

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



⑪ Veröffentlichungsnummer : **0 453 396 A1**

⑫

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

⑰ Anmeldenummer : **91810192.4**

⑤① Int. Cl.<sup>6</sup> : **C09D 7/12**

⑳ Anmeldetag : **21.03.91**

③① Priorität : **30.03.90 CH 1056/90**

④③ Veröffentlichungstag der Anmeldung :  
**23.10.91 Patentblatt 91/43**

⑧④ Benannte Vertragsstaaten :  
**BE DE ES FR GB IT NL**

⑦① Anmelder : **CIBA-GEIGY AG**  
**Klybeckstrasse 141**  
**CH-4002 Basel (CH)**

⑦② Erfinder : **Valet, Andreas, Dr.**  
**Im Bruckacker 18**  
**W-7859 Eimeldingen (DE)**

⑤④ Lackzusammensetzungen.

⑤⑦ Es werden Lackzusammensetzungen beschrieben, die neben einem 2-Hydroxyphenylbenztriazol-UV-Absorber auch einen UV-Absorber aus der Gruppe der 2-Hydroxyphenyltriazine, 2-Hydroxybenzophenone und/oder der Oxalanilide bzw. neben einem 2-Hydroxyphenyltriazin auch ein 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid enthalten.

EP 0 453 396 A1

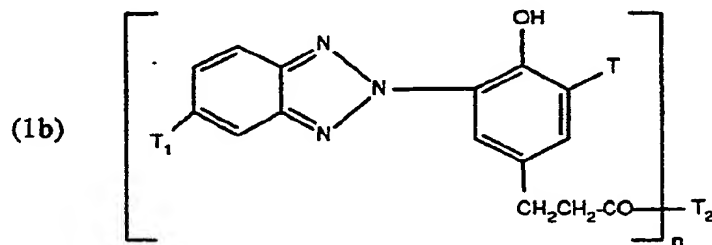
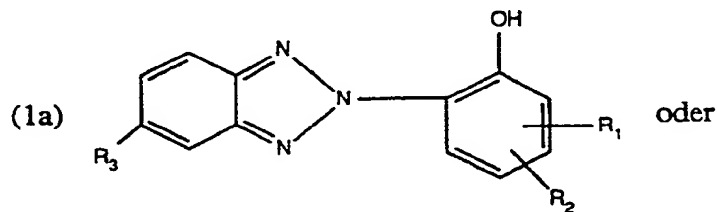
Die vorliegende Erfindung betrifft neue Lackzusammensetzungen, welche Mischungen verschiedener UV-Absorber enthalten.

Die Einflüsse von Luftsauerstoff, Feuchtigkeit und vor allem UV-Licht führen in Lacken zu einem Abbau des Polymermaterials. Dies äussert sich z.B. in Rissbildungen, Glanzverlust, Farbtonänderungen, Delaminierung und Blasenbildung. Bekanntlich kann man solche Vorgänge in Lacken durch Verwendung geeigneter Stabilisatoren verzögern.

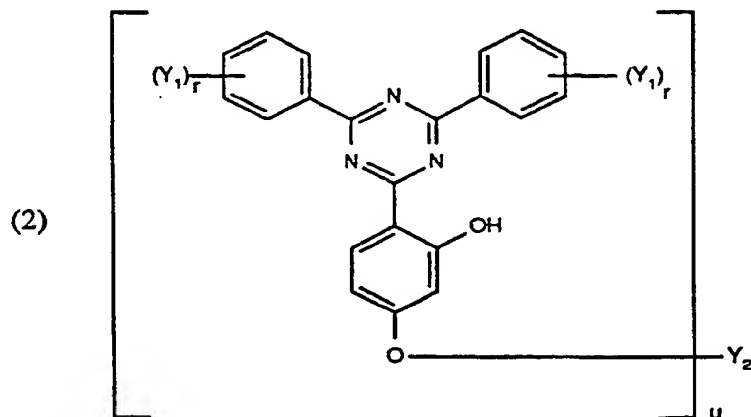
Es wurde nun gefunden, dass auch gewisse Kombinationen von UV-Absorbern unterschiedlicher chemischer Struktur in der Lage sind, die Bildung der genannten Schäden in Lacken weitgehend verhindern zu können.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind somit Lackzusammensetzungen, die als UV-Absorber eine Mischung aus mindestens einem 2-Hydroxyphenylbenztriazol und mindestens einem 2-Hydroxyphenyltriazin enthalten sowie Lackzusammensetzungen, die eine Mischung aus mindestens einem 2-Hydroxyphenyltriazin und mindestens einem 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid enthalten.

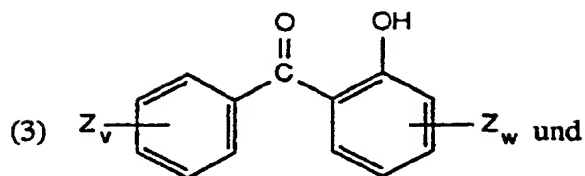
Bevorzugte Lackzusammensetzungen sind dadurch gekennzeichnet, dass das 2-Hydroxyphenylbenztriazol der Formel



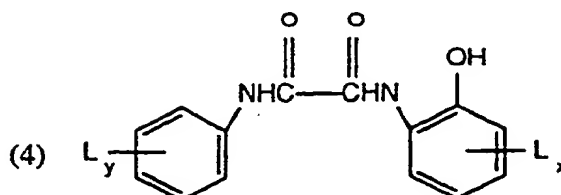
das 2-Hydroxyphenyltriazin der Formel



das 2-Hydroxybenzophenon der Formel



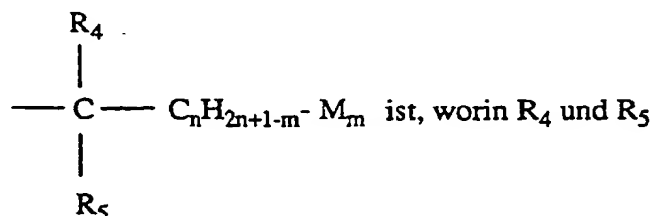
das Oxalanilid der Formel



entspricht, worin

in den Verbindungen der Formel (1a)

R<sub>1</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, Cycloalkyl mit 5 bis 8 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel



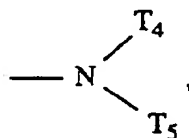
unabhängig voneinander Alkyl mit je 1 bis 5 Kohlenstoffatomen sind, oder R<sub>4</sub> zusammen mit dem Rest C<sub>n</sub>H<sub>2n+1-m</sub> einen Cycloalkylrest mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen bildet, m 1 oder 2, n eine ganze Zahl von 2 bis 20 und M ein Rest der Formel -COOR<sub>6</sub> ist, worin R<sub>6</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkoxyalkyl mit je 1 bis 20 Kohlenstoffatomen im Alkyl- und Alkoxyteil oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil ist,

R<sub>2</sub> Wasserstoff, Halogen, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, und

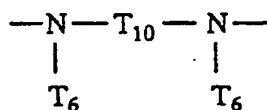
R<sub>3</sub> Wasserstoff, Chlor, Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder -COOR<sub>6</sub>, worin R<sub>6</sub> die angegebene Bedeutung hat, bedeutet, wobei mindestens einer der Reste R<sub>1</sub> und R<sub>2</sub> von Wasserstoff verschieden ist, in den Verbindungen der Formel (1b)

T Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,

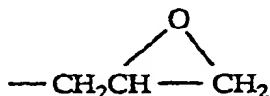
T<sub>1</sub> Wasserstoff, Chlor oder Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, n 1 oder 2 und T<sub>2</sub>, wenn n 1 ist, Chlor oder ein Rest der Formel -OT<sub>3</sub> oder



und wenn n 2 ist, ein Rest der Formel



oder -O-T<sub>9</sub>-O- ist, worin T<sub>3</sub> Wasserstoff, gegebenenfalls durch 1 bis 3 Hydroxylgruppen oder durch -OCOT<sub>6</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch -O- oder -NT<sub>6</sub>-ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, das gegebenenfalls durch Hydroxyl oder -OCOT<sub>6</sub> substituiert ist, gegebenenfalls durch Hydroxyl und/oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, gegebenenfalls durch Hydroxyl substituiertes Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder ein Rest der Formel -CH<sub>2</sub>CH(OH)-T<sub>7</sub> oder



ist, T<sub>4</sub> und T<sub>5</sub> unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch -O- oder -NT<sub>6</sub>-ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, Phenyl, mit Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder Hydroxyalkyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen bedeuten, T<sub>6</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Phenyl, mit Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, T<sub>7</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, gegebenenfalls durch Hydroxyl substituiertes Phenyl, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder -CH<sub>2</sub>OT<sub>8</sub>, T<sub>8</sub> Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenyl, mit Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, T<sub>9</sub> Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkinylen mit 4 Kohlenstoffatomen, Cyclohexylen, durch -O- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen oder einen Rest der Formel -CH<sub>2</sub>CH(OH)CH<sub>2</sub>OT<sub>11</sub>OCH<sub>2</sub>CH(OH)CH<sub>2</sub>- oder -CH<sub>2</sub>-C(CH<sub>2</sub>OH)<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-, T<sub>10</sub> gegebenenfalls durch -O- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen oder Cyclohexylen, T<sub>11</sub> Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, durch -O- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, 1,3- oder 1,4-Cyclohexylen, 1,3- oder 1,4-Phenylene ist, oder T<sub>10</sub> und T<sub>8</sub> zusammen mit den beiden Stickstoffatomen einen Piperazinring darstellen,

in den Verbindungen der Formel (2)

u 1 oder 2 ist, und r eine ganze Zahl von 1 bis 3 bedeutet, die Substituenten Y<sub>1</sub> unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxyl, Halogenmethyl, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Halogen bedeuten, Y<sub>2</sub>, wenn u 1 ist, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Halogen, unsubstituiertes oder durch Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Halogen substituiertes Phenoxy, durch -COOH, -COOY<sub>8</sub>, -CONH<sub>2</sub>, -CONHY<sub>9</sub>, -CONY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub>, -NH<sub>2</sub>, -NHY<sub>9</sub>, -NY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub>, -NHCOY<sub>11</sub>, -CN und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, durch ein oder mehrere Sauerstoffatome unterbrochenes und gegebenenfalls durch Hydroxyl oder Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen substituiertes Alkyl mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen, Glycidyl, gegebenenfalls durch Hydroxyl, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Cyclohexyl, unsubstituiertes oder durch Hydroxyl, Chlor und/oder Methyl substituiertes Phenylalkyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, -COY<sub>12</sub> oder -SO<sub>2</sub>Y<sub>13</sub> bedeutet, oder Y<sub>2</sub> wenn u 2 ist, Alkylen mit 2 bis 16 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, Xylylen, durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkylen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen, -CH<sub>2</sub>CH(OH)CH<sub>2</sub>-O-Y<sub>15</sub>-OCH<sub>2</sub>CH(OH)CH<sub>2</sub>-, -CO-Y<sub>16</sub>-CO-, -CO-NH-Y<sub>17</sub>-NH-CO- oder -(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO<sub>2</sub>-Y<sub>18</sub>-OCO-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>- ist, worin m 1, 2 oder 3 ist, Y<sub>8</sub> Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch ein oder mehrere Sauerstoff- oder Schwefelatome oder -NT<sub>6</sub>- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen, durch -P(O)(OY<sub>14</sub>)<sub>2</sub>, -NY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub> oder -OCOY<sub>11</sub> und/oder Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, Glycidyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkylteil bedeutet, Y<sub>9</sub> und Y<sub>10</sub> unabhängig voneinander Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkoxyalkyl mit 3 bis 12 Kohlenstoffatomen, Dialkylaminoalkyl mit 4 bis 16 Kohlenstoffatomen oder Cyclohexyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeuten, oder Y<sub>9</sub> und Y<sub>10</sub> zusammen Alkylen, Oxaalkylen- oder Azaalkylen mit je 3 bis 9 Kohlenstoffatomen bedeuten, Y<sub>11</sub> Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Phenyl, Y<sub>12</sub> Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Phenoxy, Alkylamino mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Phenylamino, Y<sub>13</sub> Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkylphenyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im Alkylrest, Y<sub>14</sub> Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Phenyl, Y<sub>15</sub> Alkylen mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenylene oder eine Gruppe -Phenylene-M-Phenylene-,

worin M -O-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>- oder -C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>- ist, Y<sub>16</sub> Alkylen, Oxaalkylen oder Thiaalkylen mit je 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenylen oder Alkenylen mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, Y<sub>17</sub> Alkylen mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenylen, Alkylphenylen mit 1 bis 11 Kohlenstoffatomen im Alkylteil und Y<sub>18</sub> Alkylen mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen oder durch Sauerstoff ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen ist,

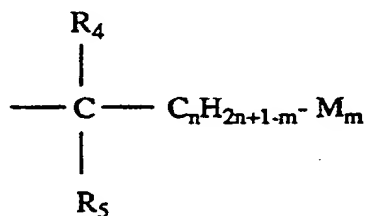
in den Verbindungen der Formel (3)

v eine ganze Zahl von 1 bis 3 und w 1 oder 2 ist, und die Substituenten Z unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Hydroxyl oder Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen sind, und

in den Verbindungen der Formel (4)

x eine ganze Zahl von 1 bis 3 ist, und die Substituenten L unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Alkylthio mit je 1 bis 22 Kohlenstoffatomen, Phenoxy oder Phenylthio bedeuten.

In den Verbindungen der Formel (1a) kann R<sub>1</sub> Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen bedeuten, wie Methyl, Äthyl, Propyl, Butyl, Hexyl, Octyl, Nonyl, Dodecyl, Tetradecyl, Hexadecyl, Octadecyl, Nonadecyl und Eicosyl sowie entsprechende verzweigte Isomere. Ferner kann R<sub>1</sub> neben Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, wie z.B. Benzyl, auch Cycloalkyl mit 5 bis 8 Kohlenstoffatomen, z.B. Cyclopentyl, -hexyl und -octyl oder auch ein Rest der Formel



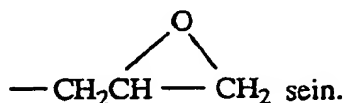
sein, worin R<sub>4</sub> und R<sub>5</sub> unabhängig voneinander Alkyl mit je 1 bis 5 Kohlenstoffatomen, insbesondere Methyl bedeuten, oder R<sub>4</sub> mit dem C<sub>n</sub>H<sub>2n+1-m</sub>-Rest einen Cycloalkylrest mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen bildet, wie z.B. Cyclohexyl, Cyclooctyl und Cyclododecyl. M bedeutet ein Rest der Formel -COOR<sub>6</sub>, worin R<sub>6</sub> neben Wasserstoff auch Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Alkoxyalkyl mit je 1 bis 20 Kohlenstoffatomen im Alkyl- und Alkoxyteil bedeutet. Als Alkylreste R<sub>6</sub> kommen die für R<sub>1</sub> aufgezählten in Frage. Geeignete Alkoxyalkylgruppen sind z.B. -C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>OC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>, -C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>OC<sub>8</sub>H<sub>17</sub> und -C<sub>4</sub>H<sub>8</sub>OC<sub>4</sub>H<sub>9</sub>. Als Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen bedeutet R<sub>6</sub> beispielsweise Benzyl, Cumyl, α-Methylbenzyl oder Phenylbutyl.

R<sub>2</sub> kann neben Wasserstoff und Halogen, z.B. Chlor und Brom, auch Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen bedeuten. Beispiele solcher Alkylreste sind in den Definitionen von R<sub>1</sub> angegeben. R<sub>2</sub> kann ferner Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, z.B. Benzyl, α-Methylbenzyl und Cumyl bedeuten.

Mindestens einer der Reste R<sub>1</sub> und R<sub>2</sub> muss von Wasserstoff verschieden sein.

R<sub>3</sub> ist neben Wasserstoff oder Chlor auch Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, z.B. Methyl, Butyl, Methoxy und Aethoxy, und auch -COOR<sub>6</sub>.

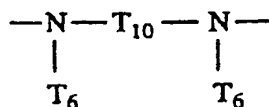
In den Verbindungen der Formel (1b) bedeutet T Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, wie Methyl und Butyl, T<sub>1</sub> ist neben Wasserstoff oder Chlor auch Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, beispielsweise Methyl, Methoxy und Butoxy, und T<sub>2</sub> ist, wenn n 1 ist, Chlor oder ein Rest der Formel -OT<sub>3</sub> oder -NT<sub>4</sub>T<sub>6</sub>. Hierin ist T<sub>3</sub> Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen (vgl. Definition von R<sub>1</sub>). Diese Alkylreste können mit 1 bis 3 Hydroxylgruppen oder durch einen Rest -OCOT<sub>6</sub> substituiert sein. Des weiteren kann T<sub>3</sub> Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen bedeuten (vgl. Definition von R<sub>1</sub>), welches durch -O- oder -NT<sub>6</sub>- ein- oder mehrfach unterbrochen ist und gegebenenfalls durch Hydroxyl oder -OCOT<sub>6</sub> substituiert ist. In der Bedeutung von Cycloalkyl ist T<sub>3</sub> z.B. Cyclopentyl, -hexyl oder -octyl. T<sub>3</sub> kann ferner Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen bedeuten. Geeignete Alkenylreste leiten sich von den in den Definitionen von R<sub>1</sub> aufgezählten Alkylreste ab. Diese Alkenylreste können durch Hydroxyl substituiert sein. Als Phenylalkyl ist T<sub>3</sub> z.B. Benzyl, Phenyläthyl, Cumyl, α-Methylbenzyl oder Benzyl. Ferner kann T<sub>3</sub> ein Rest der Formel -CH<sub>2</sub>CH(OH)-T<sub>7</sub> oder



Wie T<sub>3</sub> können T<sub>4</sub> und T<sub>5</sub>, neben Wasserstoff unabhängig voneinander Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch -O- oder -NT<sub>6</sub>- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen bedeuten.

Ferner können  $T_4$  und  $T_5$  Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, wie z.B. Cyclopentyl, -hexyl und -octyl bedeuten. Beispiele für Alkenylgruppen  $T_4$  und  $T_5$  sind in den Erläuterungen von  $T_3$  zu finden. In der Bedeutung von Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil sind  $T_4$  und  $T_5$  z.B. Benzyl oder Phenylbutyl. Schliesslich können diese Substituenten auch Hydroxyalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen bedeuten.

Wenn  $n = 2$  ist, bedeutet  $T_2$  einen zweiwertigen Rest der Formel



oder  $\text{---O---}T_9\text{---O---}$ .

$T_6$  (siehe auch oben) bedeutet neben Wasserstoff, Alkyl, Cycloalkyl, Alkenyl, Aryl oder Phenylalkyl, wobei Beispiele für solche Reste oben bereits angegeben sind.

Ausser Wasserstoff den oben genannten Phenylalkylresten und langkettigen Alkylresten kann  $T_7$  Phenyl oder Hydroxyphenyl sowie  $\text{---CH}_2\text{OT}_8$  bedeuten, wobei  $T_8$  einer der aufgezählten Alkyl-, Alkenyl-, Cycloalkyl-, Aryl- oder Phenylalkylreste sein kann.

Der zweiwertige Rest  $T_9$  kann Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten, wobei solche Reste auch verzweigt sein können. Dies trifft auch für die Alkenylen- und Alkinylenreste  $T_9$  zu. Neben Cyclohexylen kann  $T_9$  auch ein Rest der Formel  $\text{---CH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OT}_{11}$ ,  $\text{OCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{---}$  oder  $\text{---CH}_2\text{C}(\text{CH}_2\text{OH})_2\text{CH}_2\text{---}$  bedeuten.

$T_{10}$  ist ein zweiwertiger Rest und bedeutet neben Cyclohexylen auch Alkylen mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen, das gegebenenfalls durch  $\text{---O---}$  ein- oder mehrfach unterbrochen ist. Geeignete Alkylenreste leiten sich von den in den Definitionen von  $R_1$  genannte Alkylresten ab.

$T_{11}$  bedeutet ebenfalls einen Alkylenrest. Er enthält 2 bis 8 Kohlenstoffatome oder, wenn er durch  $\text{---O---}$  ein- oder mehrfach unterbrochen ist, 4 bis 10 Kohlenstoffatome. Ferner ist  $T_{11}$  1,3- oder 1,4-Cyclohexylen oder 1,3- oder 1,4-Phenylene.

$T_6$  und  $T_{10}$  können zusammen mit den beiden Stickstoffatomen auch einen Piperazinring darstellen,

Beispiele für Alkyl-, Alkoxy-, Phenylalkyl-, Alkylen-, Alkenylen-, Alkoxyalkyl- und Cycloalkylreste sowie Alkylthio-, Oxaalkylen- oder Azoalkylenreste in den Verbindungen der Formeln (2), (3) und (4) können den obigen Ausführungen entnommen werden.

Die UV-Absorber der Formeln (1a), (1b), (2), (3) und (4) sind an sich bekannt und beispielsweise mit ihrer Herstellung in EP-A-323,408, EP-A-57,160, US Patent Application Serial No. 07/446,369 (Prio.: 5.12.89), US-A-4,619,956, DE-A-31 35 810 und GB-A-1,336,391 beschrieben. Bevorzugte Substituentenbedeutungen und Einzelverbindungen können den genannten Dokumenten entnommen werden. Sie können nach üblichen, an sich bekannten Methoden in Lacke bzw. Lackzusammensetzungen eingearbeitet werden. In der Regel betragen die Mengenverhältnisse 0,01 bis 5, insbesondere 0,02 bis 3,0 Gew.-% (aller eingesetzter) UV-Absorber, bezogen auf die Lackzusammensetzung, wobei die zu wählenden Mengen an UV-Absorber von der Natur der Lackzusammensetzung und den Anforderungen an ihre Stabilität abhängig sein können. Die einzelnen UV-Absorberkomponenten können einzeln oder als Gemisch den entsprechenden Lackzusammensetzungen zugefügt werden. Den Zweischichtlacken kann die Zugabe zur Unterschicht und/oder Oberschicht erfolgen. Bevorzugt enthält die Oberschicht die UV-Absorbermischungen. Den Lackzusammensetzungen können auch die üblichen weiteren Zusätze wie Antioxidantien, Korrosionsschutzmittel und weitere Lichtschutzmittel hinzugefügt werden, ohne dass die Schutzwirkung der erfindungsgemäss eingesetzten UV-Absorbermischungen dadurch beeinträchtigt wird.

Die erfindungsgemässen Lackzusammensetzungen können jede beliebige Art von Lacken umfassen, z.B. pigmentierte oder unpigmentierte Lacke oder Metalleffektlacke sein. Sie können ein organisches Lösungsmittel enthalten oder lösungsmittelfrei sein oder wässrige Lacke sein.

Beispiele für Lacke mit speziellen Bindemitteln sind die folgenden:

1. Lacke auf Basis von kalt- oder heiss-vernetzbaaren Alkyd-, Acrylat-, Polyester-, Epoxid- oder Melaminharzen oder Mischungen solcher Harze, gegebenenfalls mit Zusatz eines sauren Härtungskatalysators;
2. Zweikomponenten-Polyurethanlacke auf Basis von hydroxylgruppenhaltigen Acrylat-, Polyester- oder Polyetherharzen und aliphatischen oder aromatischen Polyisocyanaten;
3. Einkomponenten-Polyurethanlacke auf Basis von blockierten Polyisocyanaten, die während des Einbrennens deblockiert werden;
4. Zweikomponentenlacke auf Basis von (Poly)ketiminen und aliphatischen oder aromatischen Polyisocyanaten;
5. Zweikomponentenlacke auf Basis von (Poly)ketiminen und einem ungesättigten Acrylatharz oder einem Polyacetoacetatharz oder einem Methylacrylamidoglykolatmethylester,



6. Zweikomponentenlacke auf Basis von carboxyl- oder aminogruppenhaltigen Polyacrylaten und Polyepoxiden;  
 7. Zweikomponentenlacke auf Basis von anhydridgruppenhaltigen Acrylatharzen und einer Polyhydroxy- oder Polyaminokomponente;  
 8. Zweikomponentenlacke auf Basis von (Poly)oxazolidinen und anhydridgruppenhaltigen Acrylatharzen oder ungesättigten Acrylatharzen oder aliphatischen oder aromatischen Polyisocyanaten.  
 9. Zweikomponentenlacke auf Basis von ungesättigten Polyacrylaten und Polymalonaten;  
 10. thermoplastische Polyacrylatlacke auf Basis von thermoplastischen Acrylatharzen oder fremdvernetzenden Acrylatharzen in Kombination mit veretherten Melaminharzen;  
 11. Lacksysteme auf Basis von siloxanmodifizierten Acrylatharzen.  
 12. Lacksysteme auf Basis von fluormodifizierten Acrylatharzen.

Die Lacke können auch strahlenhärtbare Lacke sein. In diesem Fall besteht das Bindemittel aus monomeren oder oligomeren Verbindungen, die ethylenische Doppelbindungen enthalten und durch Bestrahlung mit aktinischem Licht oder mit Elektronenstrahlen in eine vernetzte hochmolekulare Form übergehen. Meist handelt es sich hierbei um ein Gemisch solcher Verbindungen.

Die Lacke können als Einschicht- oder Zweischichtlacke appliziert werden, wobei die erfindungsgemässen Stabilisatoren vorzugsweise der unpigmentierten obersten Schicht zugesetzt werden.

Die Lacke können auf die Substrate (Metall, Plastik, Holz etc.) nach den üblichen Verfahren aufgebracht werden, beispielsweise durch Streichen, Besprühen, Giessen, Tauchen oder Elektrophorese. Besonders bevorzugt stellen die erfindungsgemässen Zusammensetzungen Lacke für Kraftfahrzeuge dar. Geeignete Lacksysteme und Bindemittel sind z.B. in den US-A-4,314,933, 4,344,876, 4,426,471, 4,426,472 und 4,429,077 beschrieben.

Die vorliegende Erfindung betrifft auch Lackfilme, die durch Aufbringen auf eine Oberfläche und Härtung erhältlich ist.

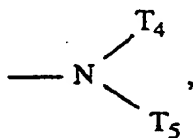
Erfindungsgemäss werden Lackzusammensetzungen bevorzugt, in denen das Molverhältnis von 2-Hydroxyphenylbenzotriazol zu 2-Hydroxyphenyltriazin, 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid in der UV-Absorbermischung 3:1 bis 1:3, und insbesondere 2: 1 bis 1:2 beträgt.

Weitere bevorzugte Lackzusammensetzungen enthalten als UV-Absorber eine Mischung aus mindestens einem 2-Hydroxyphenylbenzotriazol und mindestens einem 2-Hydroxyphenyltriazin. Des weiteren sind solche Zusammensetzungen von Interesse, die mindestens ein 2-Hydroxyphenyltriazin und mindestens ein 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid enthalten.

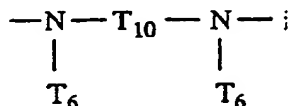
In den UV-Absorbermischungen haben sich solche UV-Absorber der Formel (1a) besonders bewährt, worin der Substituent  $R_1$  oder  $R_2$  in ortho- oder para-Stellung zur Hydroxylgruppe steht.

Dies trifft auch für UV-Absorber der Formel (1a) zu worin  $R_1$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen,  $R_2$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, und  $R_3$  Wasserstoff, Chlor oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist, besonders für solche UV-Absorber aus dieser Gruppe, worin  $R_1$  in ortho-Stellung zur Hydroxylgruppe steht und Wasserstoff, Alkyl mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen ist,  $R_2$  in para-Stellung zur Hydroxylgruppe steht und Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Cumyl und  $R_3$  Wasserstoff oder Chlor ist, und insbesondere für solche UV-Absorber der Formel (1a), worin  $R_1$  Alkyl mit 8 bis 12 Kohlenstoffatomen,  $R_2$  Alkyl mit 4 bis 6 Kohlenstoffatomen und  $R_3$  Wasserstoff ist.

Geeignete UV-Absorber der Formel (1b) sind dadurch gekennzeichnet, dass T Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Ti Wasserstoff, Chlor oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, n 1 oder 2 und  $T_2$ , wenn n 1 ist, einer der Reste der Formel  $-OT_3$  oder



und wenn n 2 ist, ein Rest der Formel  $-O-T_9-O-$  oder

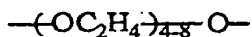


ist, worin  $T_3$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch  $-O-$  ein- oder mehrfach unterbroche-

nes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen ist,  $T_4$  und  $T_5$  unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen oder Hydroxyalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen sind,  $T_8$  Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen ist, und  $T_9$  und  $T_{10}$  Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 8 Kohlenstoffatomen oder durch -O- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 4 bis 18 Kohlenstoffatomen ist, worin jene UV-Absorber mit Vorteil eingesetzt werden, in denen  $T_1$  Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,  $T_1$  Wasserstoff oder Chlor und  $T_2$  einer der Reste der Formel -OT<sub>3</sub> oder -O-T<sub>9</sub>-O- ist, worin  $T_3$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel

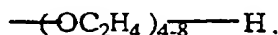


und  $T_9$  Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen oder ein rest der Formel



ist.

In besonders geeigneten Verbindungen der Formel (1b) ist  $T_3$  Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel



Von den UV-Absorbern der Formel (2) werden solche bevorzugt, worin die Substituenten  $Y_1$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Halogen bedeuten,  $Y_2$ , wenn u 1 ist, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub>, -CONY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub>, und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Glycidyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil ist, oder  $Y_2$ , wenn u 2 ist, Alkylen mit 2 bis 16 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, Xylylen oder durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkylen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen ist, wobei die Substituenten  $Y_8$  bis  $Y_{11}$  die oben angegebenen Bedeutungen haben. Insbesondere kommen hiervon jene UV-Absorber in Frage, in denen die Substituenten  $Y_1$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Chlor sind,  $Y_2$ , wenn u 1 ist, unsubstituiertes oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub>, -CONY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub>, und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Glycidyl oder Benzyl ist, oder  $Y_2$ , wenn u 2 ist, Alkylen mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen, Butenylen, Xylylen oder durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkylen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen ist, wobei  $Y_8$  Alkyl mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 12 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, ist,  $Y_9$  und  $Y_{10}$  Alkyl mit 4 bis 8 Kohlenstoffatomen sind, und  $Y_{11}$  Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder Alkenyl mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen ist.

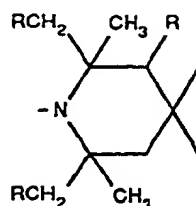
Eine weitere zur Verwendung in Lackzusammensetzungen besonders geeignete Gruppe von Verbindungen der Formel (2) ist dadurch gekennzeichnet, dass u 1 und r 2 ist,  $Y_1$  Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und  $Y_2$  Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub> und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen ist, worin  $Y_8$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch ein oder mehrere Sauerstoffatome unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen und  $Y_{11}$  Alkenyl 2 bis 18 Kohlenstoffatomen ist.

Bevorzugt hiervon sind solche Verbindungen, worin  $Y_2$  Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 12 bis 15 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub> und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist, worin  $Y_8$  Alkyl mit 8 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 12 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch ein Sauerstoffatom unterbrochenes und Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen und  $Y_{11}$  Alkenyl 2 bis 8 Kohlenstoffatomen ist, und insbesondere jene Verbindungen, worin  $Y_1$  Methyl und  $Y_2$  ein Octylrest oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 13 oder 15 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub> und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist, worin  $Y_8$  ein Decyl- oder Octadecenylrest oder durch Hydroxyl substituiertes und ein Sauerstoffatom unterbrochenes Alkyl mit 7 Kohlenstoffatomen und  $Y_{11}$  Propenyl ist.

Von Interesse sind auch solche UV-Absorber der Formel (3), worin v und w unabhängig voneinander 1 oder 2 sind, und die Substituenten Z unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen oder Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen sind, sowie solche UV-Absorber der Formel (4), worin x und y unabhängig voneinander 1 oder 2 sind, und die Substituenten L unabhängig voneinander Wasserstoff oder Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 12 Kohlenstoffatomen sind.

Es hat sich als vorteilhaft erwiesen, in Kombination mit erfindungsgemässen UV-Absorbermischungen mindestens ein weiteres Lichtschutzmittel aus der Klasse der gehinderten Amine zu verwenden, insbesondere eine

Verbindung, die mindestens einen Rest der Formel

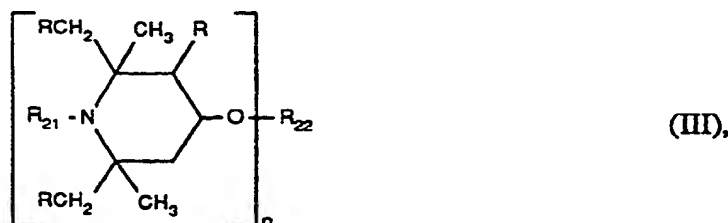


enthält, worin R Wasserstoff oder vorzugsweise Methyl ist. Diese Verbindungen sind aus einer Vielzahl von Publikationen bekannt.

Es handelt sich dabei um Derivate von Polyalkylpiperidinen, insbesondere von 2,2,6,6-Tetramethylpiperidin. Bevorzugt tragen diese Verbindungen in 4-Stellung des Piperidinringes einen oder zwei polare Substituenten oder ein polares Spiro-Ringsystem. Es kann sich bei diesen Verbindungen um niedermolekulare oder oligomere oder polymere Verbindungen handeln.

Von Bedeutung sind insbesondere die folgenden Klassen von Polyalkylpiperidinen.

a) Verbindungen der Formel III,



worin n eine Zahl von 1 bis 4, vorzugsweise 1 oder 2 bedeutet, R Wasserstoff oder Methyl bedeutet,  $R_{21}$  Wasserstoff, Oxy, Hydroxyl,  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Alkenyl,  $C_3$ - $C_8$ -Alkynyl,  $C_7$ - $C_{12}$ -Arylalkyl,  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkoxy,  $C_5$ - $C_8$ -Cycloalkoxy,  $C_7$ - $C_9$ -Phenylalkoxy,  $C_1$ - $C_8$ -Alkanoyl,  $C_3$ - $C_5$ -Alkenoyl,  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkanoyloxy, Benzoyloxy, Glycidyl oder eine Gruppe  $-CH_2CH(OH)-Z$ , worin Z Wasserstoff, Methyl oder Phenyl ist, bedeutet, wobei  $R_{21}$  vorzugsweise H,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, Allyl, Benzyl, Acetyl oder Acryloyl ist und  $R_{22}$ , wenn n 1 ist, Wasserstoff, gegebenenfalls durch ein oder mehrere Sauerstoffatome unterbrochenes  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyl, Cyanethyl, Benzyl, Glycidyl, einen einwertigen Rest einer aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen, ungesättigten oder aromatischen Carbonsäure, Carbonsäure oder Phosphor enthaltenden Säure oder einen einwertigen Silylrest, vorzugsweise einen Rest einer aliphatischen Carbonsäure mit 2 bis 18 C-Atomen, einer cycloaliphatischen Carbonsäure mit 7 bis 15 C-Atomen, einer  $\alpha,\beta$ -ungesättigten Carbonsäure mit 3 bis 5 C-Atomen oder einer aromatischen Carbonsäure mit 7 bis 15 C-Atomen bedeutet, wenn n 2 ist,  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkylen,  $C_4$ - $C_{12}$ -Alkenylen, Xylylen, einen zweiwertigen Rest einer aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Dicarbonsäure, Dicarbonsäure oder Phosphor enthaltenden Säure oder einen zweiwertigen Silylrest, vorzugsweise einen Rest einer aliphatischen Dicarbonsäure mit 2 bis 36 C-Atomen, einer cycloaliphatischen oder aromatischen Dicarbonsäure mit 8 - 14 C-Atomen oder einer aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Dicarbonsäure mit 8 - 14 C-Atomen bedeutet, wenn n 3 ist, einen dreiwertigen Rest einer aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Tricarbonsäure, einer aromatischen Tricarbonsäure oder einer Phosphor enthaltenden Säure oder einen dreiwertigen Silylrest bedeutet und wenn n 4 ist, einen vierwertigen Rest einer aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Tetracarbonsäure bedeutet.

Bedeutet etwaige Substituenten  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkyl, so stellen sie z.B. Methyl, Ethyl, n-Propyl, n-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, n-Hexyl, n-Octyl, 2-Ethyl-hexyl, n-Nonyl, n-Decyl, n-Undecyl oder n-Dodecyl dar.

In der Bedeutung von  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyl kann  $R_{21}$  oder  $R_{22}$  z.B. die oben angeführten Gruppen und dazu noch beispielsweise n-Tridecyl, n-Tetradecyl, n-Hexadecyl oder n-Octadecyl darstellen.

Wenn  $R_{21}$   $C_3$ - $C_8$ -Alkenyl bedeutet, so kann es sich z.B. um 1-Propenyl, Allyl, Methallyl, 2-Butenyl, 2-Pentenyl, 2-Hexenyl, 2-Octenyl, 4-tert.-Butyl-2-butenyl handeln.

$R_{21}$  ist als  $C_3$ - $C_8$ -Alkynyl bevorzugt Propargyl.

Als  $C_7$ - $C_{12}$ -Arylalkyl ist  $R_{21}$  insbesondere Phenethyl und vor allem Benzyl.

$R_{21}$  ist als  $C_1$ - $C_8$ -Alkanoyl beispielsweise Formyl, Propionyl, Butyryl, Octanoyl, aber bevorzugt Acetyl und als  $C_3$ - $C_5$ -Alkenoyl insbesondere Acryloyl.

Bedeutet  $R_{22}$  einen einwertigen Rest einer Carbonsäure, so stellt es beispielsweise einen Essigsäure-, Capronsäure-, Stearinsäure-, Acrylsäure-, Methacrylsäure-, Benzoe- oder  $\beta$ -(3,5-Di-tert.-butyl-4-hydroxyphenyl)-propionsäurerest dar.

5 Bedeutet  $R_{22}$  einen zweiwertigen Rest einer Dicarbonsäure, so stellt es beispielsweise einen Malonsäure-, Bernsteinsäure-, Glutarsäure-, Adipinsäure-, Korksäure-, Sebacinsäure-, Maleinsäure-, Itaconsäure-, Phthalsäure-, Dibutylmalonsäure-, Dibenzylmalonsäure-, Butyl-(3,5-di-tert.-butyl-4-hydroxybenzyl)-malonsäure- oder Bicycloheptendicarbonsäurerest dar.

Stellt  $R_{22}$  einen dreiwertigen Rest einer Tricarbonsäure dar, so bedeutet es z.B. einen Trimellitsäure-, Citronensäure- oder Nitilotriessigsäurerest.

10 Stellt  $R_{22}$  einen vierwertigen Rest einer Tetracarbonsäure dar, so bedeutet es z.B. den vierwertigen Rest von Butan-1,2,3,4-tetracarbonsäure oder von Pyromellitsäure.

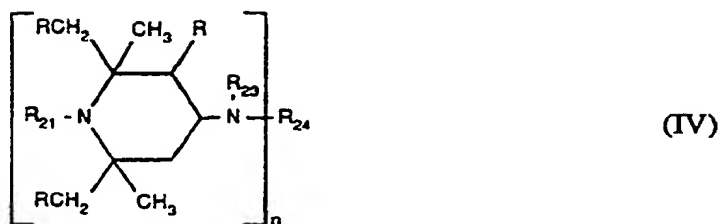
Bedeutet  $R_{22}$  einen zweiwertigen Rest einer Dicarbaminsäure, so stellt es beispielsweise einen Hexamethylendicarbaminsäure- oder einen 2,4-Toluylen-dicarbaminsäurerest dar.

15 Bevorzugt sind Verbindungen der Formel III, worin R Wasserstoff ist,  $R_{21}$  Wasserstoff oder Methyl ist, n 1 ist und  $R_{22}$  C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl ist oder n 2 ist und  $R_{22}$  der Diacylrest einer aliphatischen Dicarbonsäure mit 4-12 C-Atomen ist.

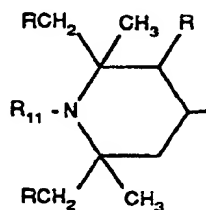
Beispiele für Polyalkylpiperidin-Verbindungen dieser Klasse sind folgende Verbindungen:

- 1) 4-Hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 2) 1-Allyl-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 20 3) 1-Benzyl-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 4) 1-(4-tert.-Butyl-2-butenyl)-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 5) 4-Stearoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 6) 1-Ethyl-4-salicyloyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 7) 4-Methacryloyloxy-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin
  - 25 8) 1,2,2,6,6-Pentamethylpiperidin-4-yl- $\beta$ -(3,5-di-tert.-butyl-4-hydroxyphenyl)-propionat
  - 9) Di-(1-benzyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-maleinat
  - 10) Di-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-succinat
  - 11) Di-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-glutarat
  - 12) Di-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-adipat
  - 30 13) Di-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-sebacat
  - 14) Di-(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl)-sebacat
  - 15) Di-(1,2,3,6-tetramethyl-2,6-diethyl-piperidin-4-yl)-sebacat
  - 16) Di-(1-allyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-phthalat
  - 17) 1-Hydroxy-4- $\beta$ -cyanoethoxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 35 18) 1-Acetyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl-acetat
  - 19) Trimellithsäure-tri-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-ester
  - 20) 1-Acryloyl-4-benzoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 21) Diethylmalonsäure-di-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-ester
  - 22) Dibutyl-malonsäure-di-(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl)-ester
  - 40 23) Butyl-(3,5-di-tert.-butyl-4-hydroxybenzyl)-malonsäure-di-(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl)-ester
  - 24) Di-(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-sebacat
  - 25) Di-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-sebacat
  - 26) Hexan-1',6'-bis-(4-carbamoyloxy-1-n-butyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin)
  - 27) Toluol-2',4'-bis-(4-carbamoyloxy-1-n-propyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin)
  - 45 28) Dimethyl-bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-oxy)-silan
  - 29) Phenyl-tris(2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-oxy)-silan
  - 30) Tris-(1-propyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-phosphit
  - 31) Tris-(1-propyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)phosphat
  - 32) Phenyl-[bis-(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl)]-phosphonat
  - 50 33) 4-Hydroxy-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin
  - 34) 4-Hydroxy-N-hydroxyethyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 35) 4-Hydroxy-N-(2-hydroxypropyl)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
  - 36) 1-Glycidyl-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin
- b) Verbindungen der Formel IV,

55



10 worin n die Zahl 1 oder 2 bedeutet, R und R<sub>21</sub> die unter (a) angegebene Bedeutung haben, R<sub>23</sub> Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Hydroxyalkyl, C<sub>5</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, C<sub>7</sub>-C<sub>8</sub>-Aralkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>18</sub>-Alkanoyl, C<sub>3</sub>-C<sub>5</sub>-Alkenoyl, Benzoyl oder eine Gruppe der Formel



ist und R<sub>24</sub> wenn n 1 ist, Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyl, C<sub>5</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, mit einer Hydroxy-, Cyano-, Alkoxycarbonyl- oder Carbamidgruppe substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, Glycidyl, eine Gruppe der Formel -CH<sub>2</sub>-CH(OH)-Z oder der Formel -CONH-Z ist, worin Z Wasserstoff, Methyl oder Phenyl bedeutet; wenn n 2 ist, C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylen, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, Xylylen, eine -CH<sub>2</sub>-CH(OH)-CH<sub>2</sub>-Gruppe oder eine Gruppe -CH<sub>2</sub>-CH(OH)-CH<sub>2</sub>-O-D-O- bedeutet, worin D C<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylen, C<sub>6</sub>-C<sub>15</sub>-Arylen, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkylen ist, oder vorausgesetzt, dass R<sub>23</sub> nicht Alkanoyl, Alkenoyl oder Benzoyl bedeutet, R<sub>24</sub> auch einen zweiwertigen Rest einer aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Dicarbonsäure oder Dicarbaminsäure oder auch die Gruppe -CO- bedeuten kann, oder R<sub>23</sub> und R<sub>24</sub> zusammen, wenn n 1 ist, den zweiwertigen Rest einer aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen 1,2- oder 1,3-Dicarbonsäure bedeuten können.

Stellen etwaige Substituenten C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>- oder C<sub>1</sub>-C<sub>18</sub>-Alkyl dar, so haben sie die bereits unter (a) angegebene Bedeutung.

Bedeutet etwaige Substituenten C<sub>5</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, so stellen sie insbesondere Cyclohexyl dar.

Als C<sub>7</sub>-C<sub>8</sub>-Aralkyl ist R<sub>23</sub> insbesondere Phenylethyl oder vor allem Benzyl. Als C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Hydroxyalkyl ist R<sub>23</sub> insbesondere 2-Hydroxyethyl oder 2-Hydroxypropyl.

R<sub>23</sub> ist als C<sub>2</sub>-C<sub>18</sub>-Alkanoyl beispielsweise Propionyl, Butyryl, Octanoyl, Dodecanoyl, Hexadecanoyl, Octadecanoyl, aber bevorzugt Acetyl und als C<sub>3</sub>-C<sub>5</sub>-Alkenoyl insbesondere Acryloyl.

Bedeutet R<sub>24</sub> C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyl, dann handelt es sich z.B. um Allyl, Methallyl, 2-Butenyl, 2-Pentenyl, 2-Hexenyl oder 2-Octenyl.

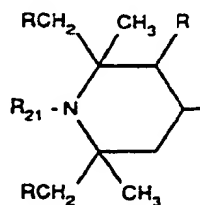
R<sub>24</sub> als mit einer Hydroxy-, Cyano-, Alkoxycarbonyl- oder Carbamidgruppe substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl kann z.B. 2-Hydroxyethyl, 2-Hydroxypropyl, 2-Cyanethyl, Methoxycarbonylmethyl, 2-Ethoxycarbonylethyl, 2-Aminocarbonylpropyl oder 2-(Dimethylaminocarbonyl)-ethyl sein.

Stellen etwaige Substituenten C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>-Alkylen dar, so handelt es sich z.B. um Ethylen, Propylen, 2,2-Dimethylpropylen, Tetramethylen, Hexamethylen, Octamethylen, Decamethylen oder Dodecamethylen.

Bedeutet etwaige Substituenten C<sub>6</sub>-C<sub>15</sub>-Arylen, so stellen sie z.B. o-, m- oder p-Phenylen, 1,4-Naphthylen oder 4,4'-Diphenylen dar.

Als C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkylen ist insbesondere Cyclohexylen zu nennen.

Bevorzugt sind Verbindungen der Formel V, worin n 1 oder 2 ist, R Wasserstoff ist, R<sub>21</sub> Wasserstoff oder Methyl ist, R<sub>23</sub> Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl oder eine Gruppe der Formel



ist und  $R_{24}$  im Fall von  $n=1$  Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkyl ist, und im Fall von  $n=2$   $C_2$ - $C_8$ -Alkylen ist.

**Beispiele für Polyalkylpiperidin-Verbindungen dieser Klasse sind folgende Verbindungen:**

- 37) N,N'-Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-hexamethylen-1,6-diamin

- 38) N,N'-Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-hexamethylen-1,6-di-acetamid

- 39) Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-amin

- 40) 4-Benzoylamino-2,2,6,6-tetramethylpiperidin

- 41) N,N'-Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-N,N'-dibutyl-adipamid**

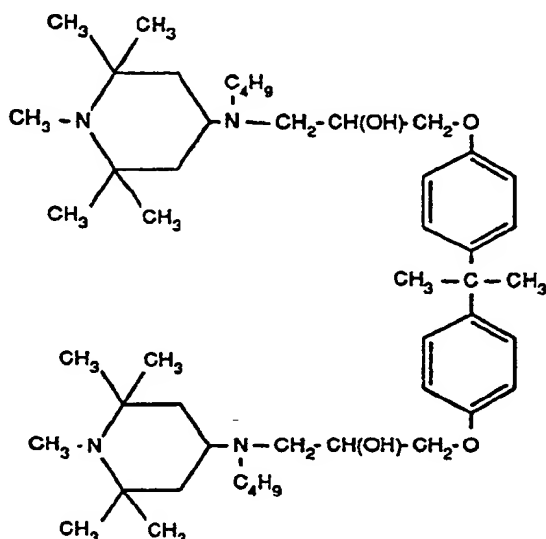
- 42) N,N'-Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-N,N'-dicyclohexyl-2-hydroxypropylen-1,3-diamin

- 43) N,N'-Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-p-xylylen-diamin

- 44) N,N'-Bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-succindiamid**

- 45) N-(2,2,6,6-Tetramethylpiperidin-4-yl)-β-aminodipropionsäure-di-(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-ester

- 46) Die Verbindung der Formel

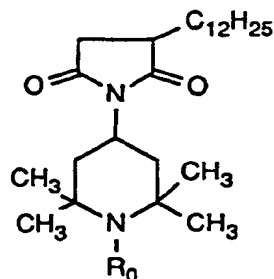


- 47) 4-(Bis-2-hydroxyethyl-amino)-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin

- 48) 4-(3-Methyl-4-hydroxy-5-tert.-butyl-benzoessäureamido)-2,2,6,6-tetra-methylpiperidin

- 49) 4-Methacrylamido-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin

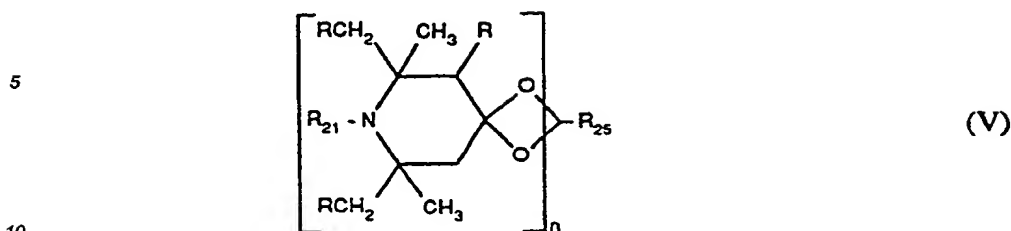
- 49) (a) bis (c) Die Verbindungen der Formel



(IV) (a),

worin  $R_0$  Wasserstoff, Methyl oder Acetyl ist.

## (c) Verbindungen der Formel (V)



worin n die Zahl 1 oder 2 bedeutet, R und R<sub>21</sub> die unter (a) angegebene Bedeutung haben und R<sub>25</sub>, wenn n 1 ist, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen oder -Hydroxyalkylen oder C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>-Acyloxyalkylen, wenn n 2 ist, die Gruppe (-CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>C(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> bedeutet.

15 Bedeutet R<sub>25</sub> C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylen oder -Hydroxyalkylen, so stellt es beispielsweise Ethylen, 1-Methyl-ethylen, Propylen, 2-Ethyl-propylen oder 2-Ethyl-2-hydroxymethylpropylen dar.

Als C<sub>4</sub>-C<sub>22</sub>-Acyloxyalkylen bedeutet R<sub>25</sub> z.B. 2-Ethyl-2-acetoxymethyl-propylen.

Beispiele für Polyalkylpiperidin-Verbindungen dieser Klasse sind folgende Verbindungen :

50) 9-Aza-8,8,10,10-tetramethyl-1,5-dioxaspiro[5.5]undecan

20 51) 9-Aza-8,8,10,10-tetramethyl-3-ethyl-1,5-dioxaspiro[5.5]undecan

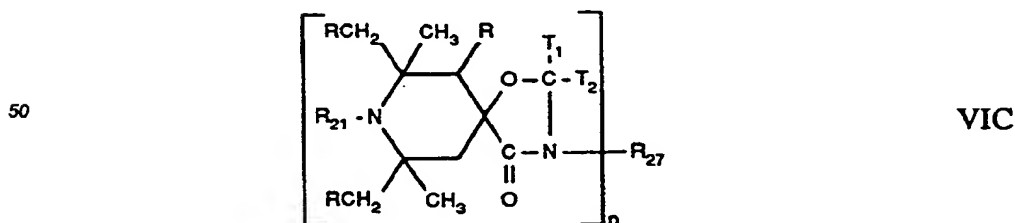
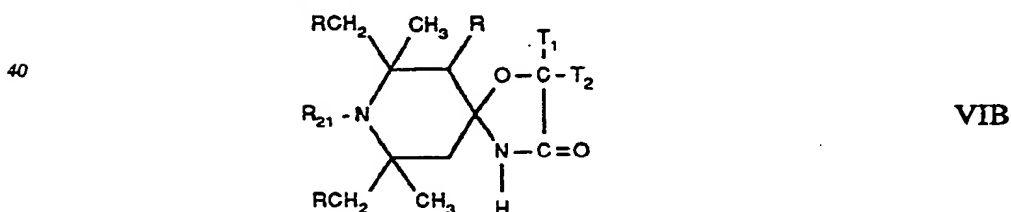
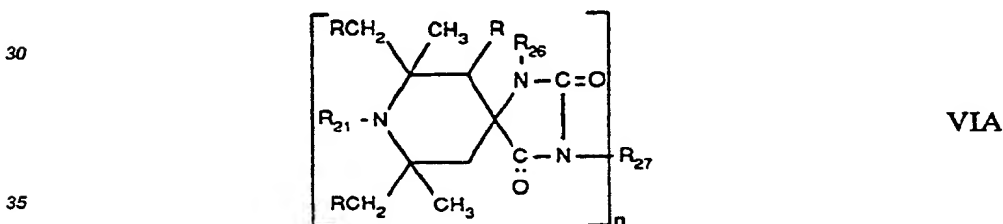
52) 8-Aza-2,7,7,8,9,9-hexamethyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan

53) 9-Aza-3-hydroxymethyl-3-ethyl-8,8,9,10,10-pentamethyl-1,5-dioxaspiro [5.5]undecan

54) 9-Aza-3-ethyl-3-acetoxymethyl-9-acetyl-8,8,10,10-tetramethyl-1,5-dioxaspiro[5.5]undecan

25 55) 2,2,6,6-Tetramethylpiperidin-4-spiro-2'-(1',3'-dioxan)-5'-spiro-5''-(1'',3''-dioxan)-2''-spiro-4'''-(2''',2'''',6'''',6''''-tetramethylpiperidin).

(d) Verbindungen der Formeln VIA, VIB und VIC



worin n die Zahl 1 oder 2 bedeutet, R und R<sub>21</sub> die unter (a) angegebene Bedeutung haben, R<sub>26</sub> Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, Allyl, Benzyl, Glycidyl oder C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxyalkyl ist und R<sub>27</sub>, wenn n 1 ist, Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>5</sub>-Alkenyl, C<sub>7</sub>-C<sub>9</sub>-Aralkyl, C<sub>5</sub>-C<sub>7</sub> Cycloalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxyalkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl, Glycidyl

oder eine Gruppe der Formel  $-(CH_2)_p-COO-Q$  oder der Formel  $-(CH_2)_p-O-CO-Q$  ist, worin  $p$  1 oder 2 und  $Q$   $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder Phenyl sind, wenn  $n$  2 ist,  $C_2$ - $C_{12}$ -Alkylen,  $C_4$ - $C_{12}$ -Alkenylen,  $C_6$ - $C_{12}$ -Arylen, eine Gruppe  $-CH_2-CH(OH)-CH_2-O-D-O-CH_2-CH(OH)-CH_2-$ , worin  $D$   $C_2$ - $C_{10}$ -Alkylen,  $C_6$ - $C_{15}$ -Arylen,  $C_6$ - $C_{12}$ -Cycloalkylen ist, oder eine Gruppe  $-CH_2CH(OZ')CH_2(OCH_2-CH(OZ')CH_2)_2-$  bedeutet, worin  $Z'$  Wasserstoff,  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyl, Allyl, Benzyl,  $C_2$ - $C_{12}$ -Alkanoyl oder Benzoyl ist,  $T_1$  und  $T_2$  unabhängig voneinander Wasserstoff,  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyl oder gegebenenfalls durch Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituiertes  $C_6$ - $C_{10}$ -Aryl oder  $C_7$ - $C_9$ -Aralkyl bedeuten oder  $T_1$  und  $T_2$  zusammen mit dem sie bindenden C-Atom einen  $C_5$ - $C_{12}$ -Cycloalkanring bilden.

Bedeutet etwaige Substituenten  $C_1$ - $C_{12}$ -Alkyl, so stellen sie z.B. Methyl, Ethyl, n-Propyl, n-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, n-Hexyl, n-Octyl, 2-Ethyl-hexyl, n-Nonyl, n-Decyl, n-Undecyl oder n-Dodecyl dar.

Etwaige Substituenten in der Bedeutung von  $C_1$ - $C_{18}$ -Alkyl können z.B. die oben angeführten Gruppen und dazu noch beispielsweise n-Tridecyl, n-Tetradecyl, n-Hexadecyl oder n-Octadecyl darstellen.

Bedeutet etwaige Substituenten  $C_2$ - $C_6$ -Alkoxyalkyl, so stellen sie z.B. Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Propoxymethyl, tert.-Butoxymethyl, Ethoxy-ethyl, Ethoxypropyl, n-Butoxyethyl, tert.-Butoxyethyl, Isopropoxyethyl oder Propoxypropyl dar.

Stellt  $R_{27}$   $C_3$ - $C_5$ -Alkenyl dar, so bedeutet es z.B. 1-Propenyl, Allyl, Methallyl, 2-Butenyl oder 2-Pentenyl.

Als  $C_7$ - $C_9$ -Aralkyl sind  $R_{27}$ ,  $T_1$  und  $T_2$  insbesondere Phenethyl oder vor allem Benzyl. Bilden  $T_1$  und  $T_2$  zusammen mit dem C-Atom einen Cycloalkanring, so kann dies z.B. ein Cyclopentan-, Cyclohexan-, Cyclooctan- oder Cyclododecanring sein.

Bedeutet  $R_{27}$   $C_2$ - $C_4$ -Hydroxyalkyl, so stellt es z.B. 2-Hydroxyethyl, 2-Hydroxypropyl, 2-Hydroxybutyl oder 4-Hydroxybutyl dar.

Als  $C_6$ - $C_{10}$ -Aryl bedeuten  $R_{17}$ ,  $T_1$  und  $T_2$  insbesondere Phenyl,  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Naphthyl, die gegebenenfalls mit Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituiert sind.

Stellt  $R_{27}$   $C_2$ - $C_{12}$ -Alkylen dar, so handelt es sich z.B. um Ethylen, Propylen, 2,2-Dimethylpropylen, Tetramethylen, Hexamethylen, Octamethylen, Decamethylen oder Dodecamethylen.

Als  $C_4$ - $C_{12}$ -Alkenylen bedeutet  $R_{27}$  insbesondere 2-Butenyl, 2-Pentenyl oder 3-Hexenyl.

Bedeutet  $R_{27}$   $C_6$ - $C_{12}$ -Arylen, so stellt es beispielsweise o-, m- oder p-Phenyl, 1,4-Naphthyl oder 4,4'-Diphenyl dar.

Bedeutet  $Z'$   $C_2$ - $C_{12}$ -Alkanoyl, so stellt es beispielsweise Propionyl, Butyryl, Octanoyl, Dodecanoyl, aber bevorzugt Acetyl dar.

$D$  hat als  $C_2$ - $C_{10}$ -Alkylen,  $C_6$ - $C_{15}$ -Arylen oder  $C_6$ - $C_{12}$ -Cycloalkylen die unter (b) angegebene Bedeutung. Beispiele für Polyalkylpiperidin-Verbindungen dieser Klasse sind folgende Verbindungen:

56) 3-Benzyl-1,3,8-triaza-7,7,9,9-tetramethylspiro[4.5]decan-2,4-dion

57) 3-n-Octyl-1,3,8-triaza-7,7,9,9-tetramethylspiro[4.5]decan-2,4-dion

58) 3-Allyl-1,3,8-triaza-1,7,7,9,9-pentamethylspiro[4.5]decan-2,4-dion

59) 3-Glycidyl-1,3,8-triaza-7,7,8,9,9-pentamethylspiro[4.5]decan-2,4-dion

60) 1,3,7,7,8,9,9-Heptamethyl-1,3,8-triazaspiro[4.5]decan-2,4-dion

61) 2-Iso-propyl-7,7,9,9-tetramethyl-1-oxa-3,8-diaza-4-oxo-spiro-[4.5]decan

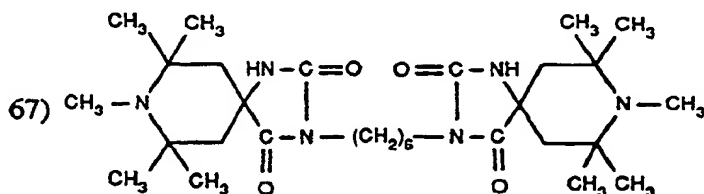
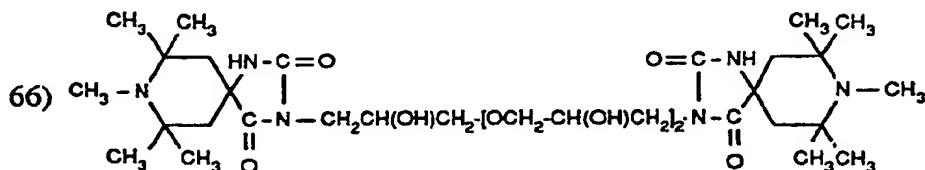
62) 2,2-Dibutyl-7,7,9,9-tetramethyl-1-oxa-3,8-diaza-4-oxo-spiro-[4.5]decan

63) 2,2,4,4-Tetramethyl-7-oxa-3,20-diaza-21-oxo-dispiro[5.1.11.2]heneicosan

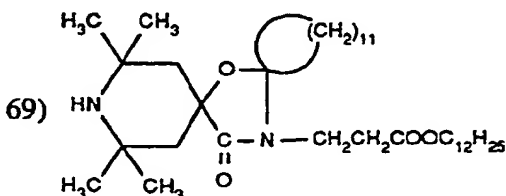
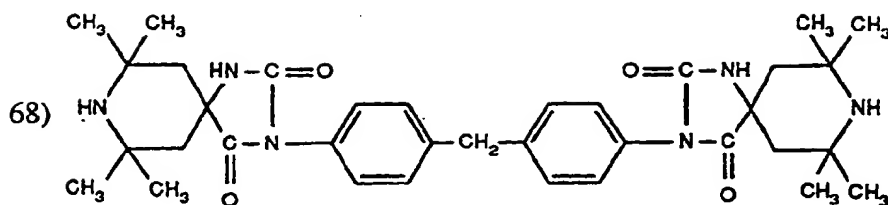
64) 2-Butyl-7,7,9,9-tetramethyl-1-oxa-4,8-diaza-3-oxo-spiro-[4.5]decan

65) 8-Acetyl-3-dodecyl-1,3,8-triaza-7,7,9,9-tetramethylspiro[4.5]decan-2,4-dion

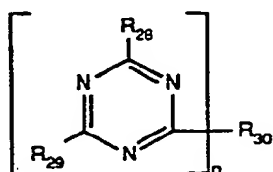
oder die Verbindungen der folgenden Formeln:





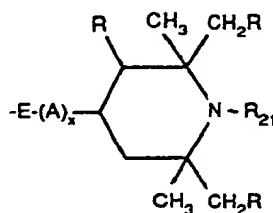


(e) Verbindungen der Formel VII, die ihrerseits bevorzugt sind,

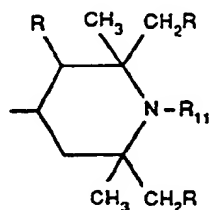


VII

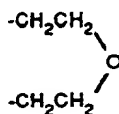
worin n die Zahl 1 oder 2 ist und  $R_{28}$  eine Gruppe der Formel



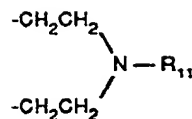
bedeutet, worin R und  $R_{21}$  die unter (a) angegebene Bedeutung haben, E-O- oder -NR<sub>21</sub>- ist, A C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylen oder -(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O- und x die Zahlen 0 oder 1 bedeuten,  $R_{29}$  gleich  $R_{28}$  oder eine der Gruppen -NR<sub>31</sub>R<sub>32</sub>, -OR<sub>33</sub>, -NHCH<sub>2</sub>OR<sub>33</sub> oder -N(CH<sub>2</sub>OR<sub>33</sub>)<sub>2</sub> ist,  $R_{30}$ , wenn n = 1 ist, gleich  $R_{28}$  oder  $R_{29}$ , und wenn n = 2 ist, eine Gruppe -E-B-E- ist, worin B gegebenenfalls durch -N(R<sub>31</sub>)- unterbrochenes C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylen bedeutet,  $R_{11}$  C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, Cyclohexyl, Benzyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkyl oder eine Gruppe der Formel



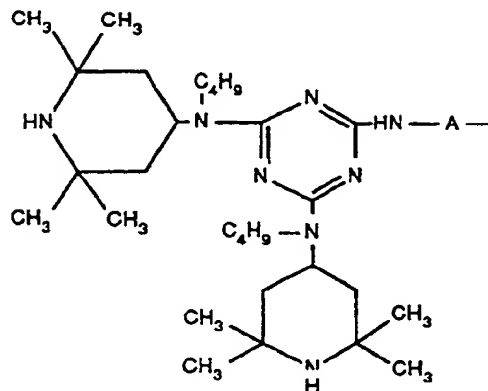
ist,  $R_{32}$  C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, Cyclohexyl, Benzyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Hydroxyalkyl und  $R_{33}$  Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl oder Phenyl bedeuten oder  $R_{31}$  und  $R_{32}$  zusammen C<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylen oder -Oxaalkylen, beispielsweise



oder eine Gruppe der Formel



sind oder auch  $\text{R}_{31}$  und  $\text{R}_{32}$  jeweils eine Gruppe der Formel



bedeuten.

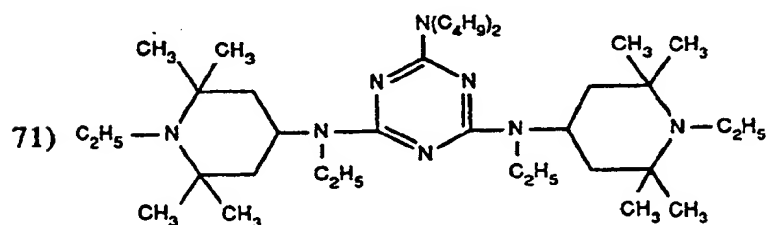
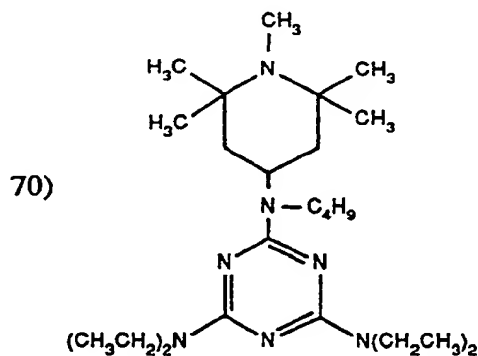
Bedeutet etwaige Substituenten  $\text{C}_1\text{-C}_{12}$ -Alkyl, so stellen sie beispielsweise Methyl, Ethyl, n-Propyl, n-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, n-Hexyl, n-Octyl, 2-Ethylhexyl, n-Nonyl, n-Decyl, n-Undecyl oder n-Dodecyl dar.

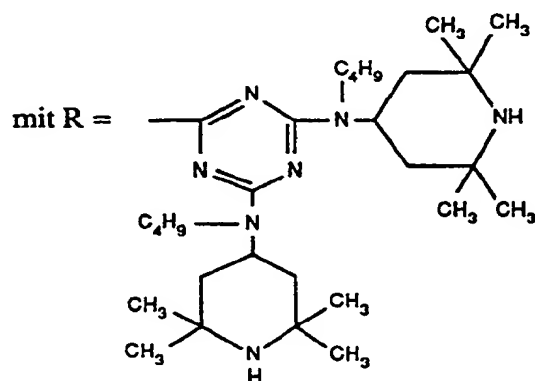
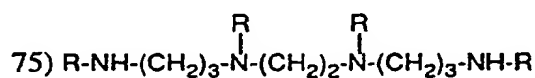
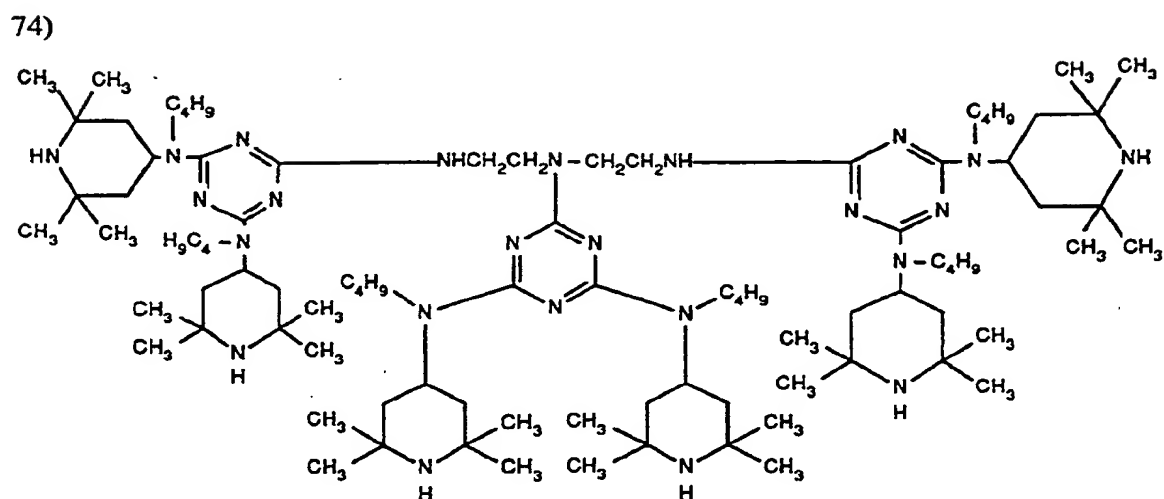
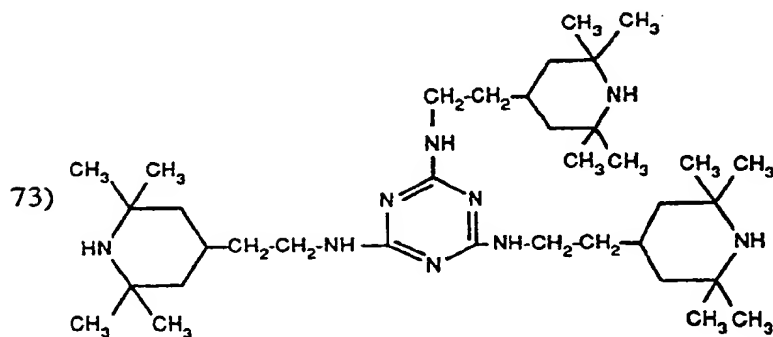
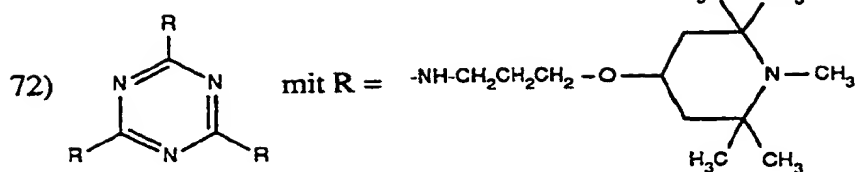
Bedeutet etwaige Substituenten  $\text{C}_1\text{-C}_4$ -Hydroxyalkyl, so stellen sie z.B. 2-Hydroxyethyl, 2-Hydroxypropyl, 3-Hydroxypropyl, 2-Hydroxybutyl oder 4-Hydroxybutyl dar.

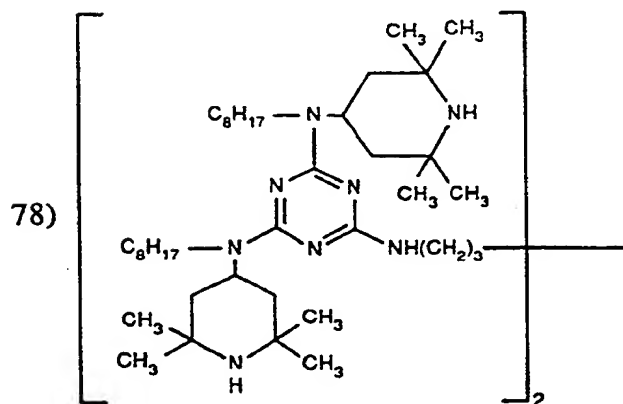
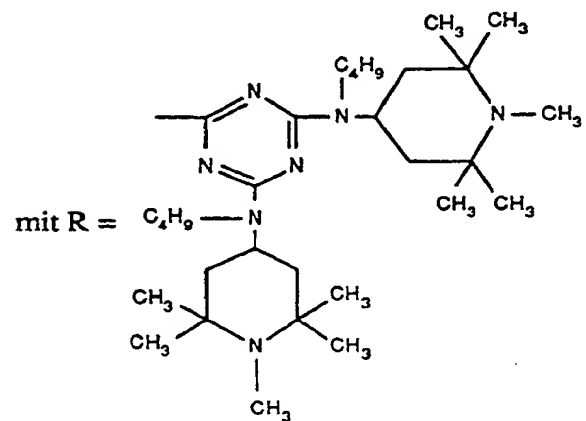
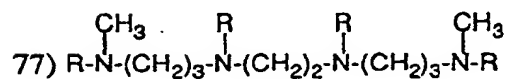
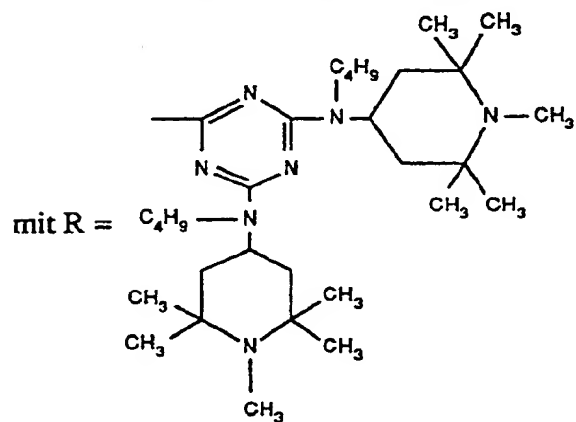
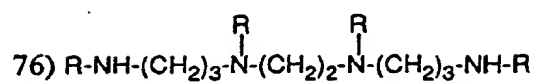
Bedeutet A  $\text{C}_2\text{-C}_6$ -Alkylen, so stellt es beispielsweise Ethylen, Propylen, 2,2-Dimethylpropylen, Tetramethylen oder Hexamethylen dar.

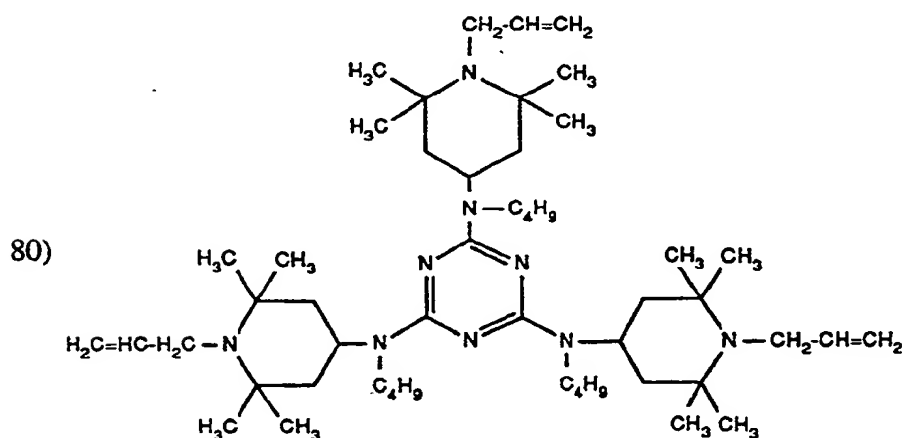
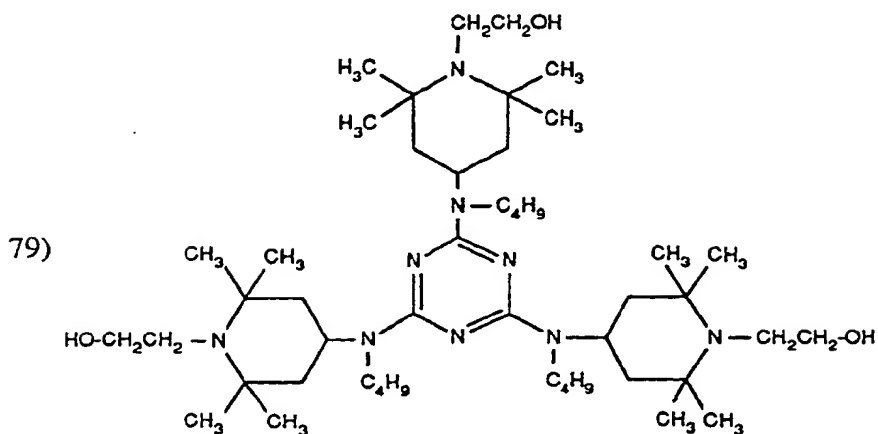
Stellen  $\text{R}_{31}$  und  $\text{R}_{32}$  zusammen  $\text{C}_4\text{-C}_5$ -Alkylen oder Oxaalkylen dar, so bedeutet dies z.B. Tetramethylen, Pentamethylen oder 3-Oxapentamethylen.

Beispiele für Polyalkylpiperidin-Verbindungen dieser Klasse sind die Verbindungen der folgenden Formeln:



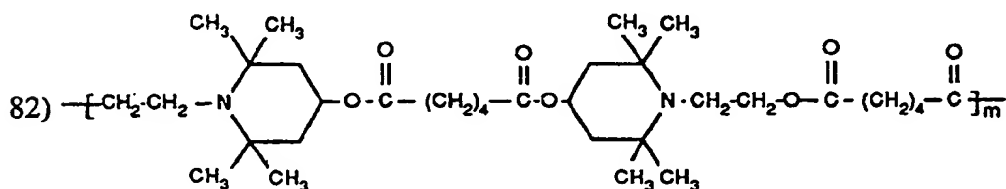
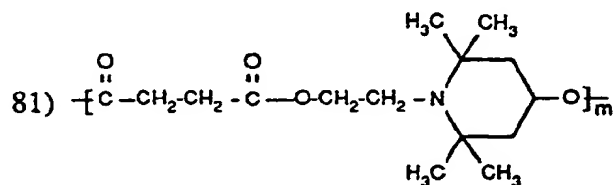


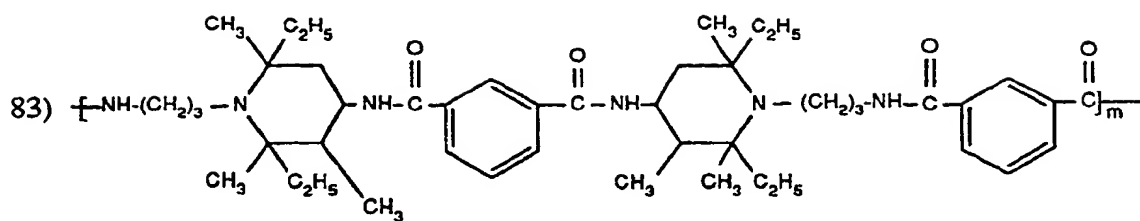




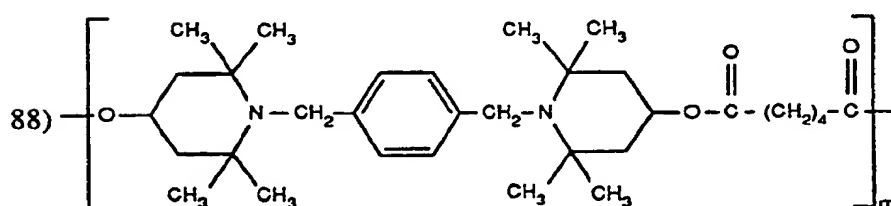
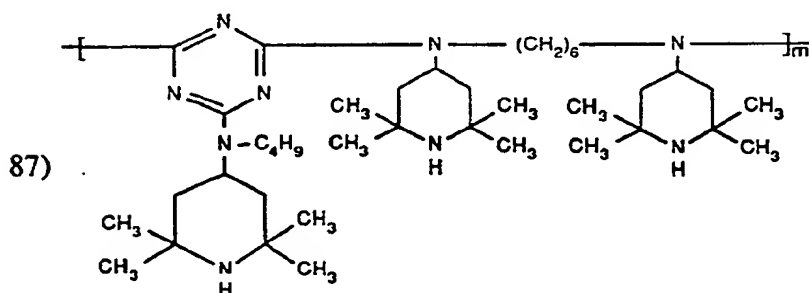
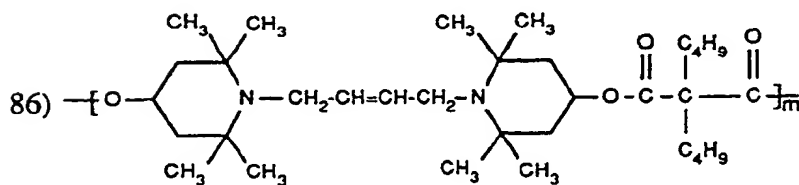
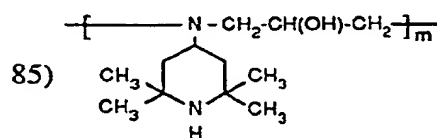
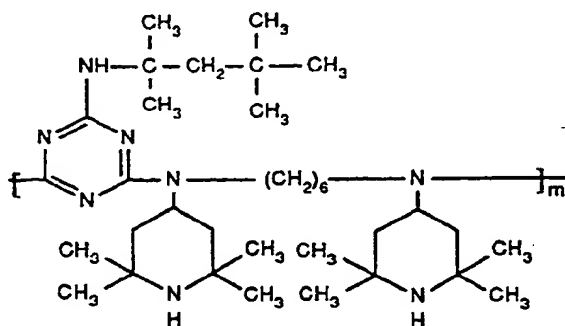
(f) Oligomere oder polymere Verbindungen, deren wiederkehrende Struktureinheit einen 2,2,6,6-Tetraalkylpiperidinrest der Formel III enthält, insbesondere Polyester, Polyäther, Polyamide, Polyamine, Polyurethane, Polyhamstoffe, Polyaminotriazine, Poly(meth)acrylate, Poly(meth)acrylamide und deren Copolymere, die solche Reste enthalten.

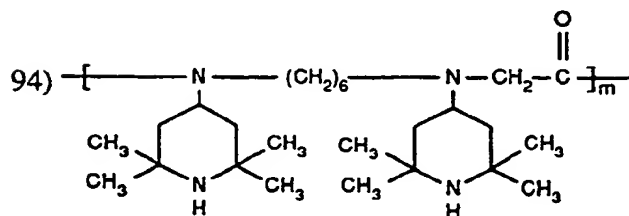
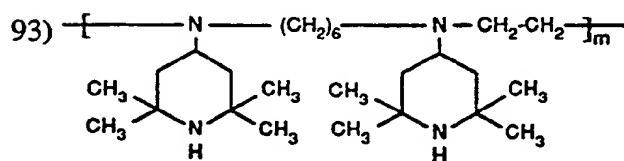
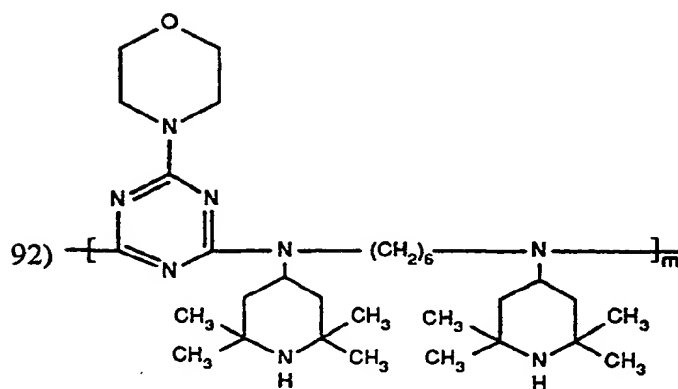
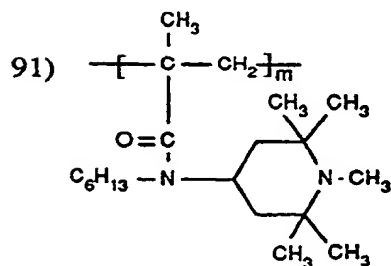
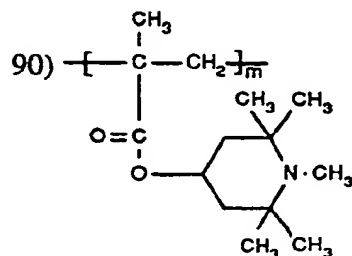
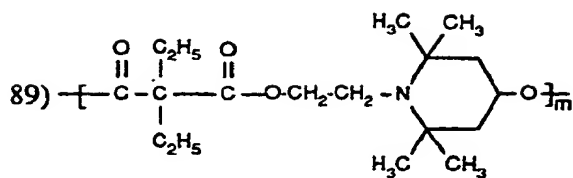
Beispiele für 2,2,6,6-Polyalkylpiperidin-Lichtschutzmittel dieser Klasse sind die Verbindungen der folgenden Formeln, wobei m eine Zahl von 2 bis etwa 200 bedeutet.





84)





Von diesen Verbindungsklassen sind die Klassen a), d), e) und f) besonders geeignet, insbesondere die

(5)

$C_{12}H_{25}$

$H_3C$   $CH_3$

$H_3C$   $CH_3$

R

10

15

Das folgende Beispiel erläutert die Erfindung weiter, ohne sie darauf zu beschränken. Teile und Prozente beziehen sich auf das Gewicht, sofern nicht anders angegeben.

### Beispiel 1: Die UV-Absorber der Formeln

20

25

(100)

Chemical structure (100) is a benzotriazole derivative. It consists of a benzotriazole ring system (a benzene ring fused to a triazole ring) connected via its nitrogen atom to a benzene ring. This second benzene ring is substituted with a hydroxyl group (HO), a tert-butyl group (C(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>), and a long alkyl chain (CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CO<sub>2</sub>C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>(i)).

30


35

40

45

und

50

(102) 

55

Die UV-Absorber werden in 10 g Xylol eingearbeitet und in den in der nachfolgenden Tabelle zugegebenen Mengen (% reiner UV-Absorber, jeweils bezogen auf Festkörperbestandteile des Lackes) einem Klarlack der



folgenden Zusammensetzung zugefügt:

5	Uracron <sup>®</sup> XB (DSM Resin BV) (50 %)	59,2	Teile
	Cymel <sup>®</sup> 327 (Cyanamid Corp.) (90 %)	11,6	Teile
	Butylglykolacetat	5,5	Teile
	Xylol	19,4	Teile
10	Butanol	3,3	Teile
	Baysilon <sup>®</sup> A (Bayer AG) (1 % in Xylol)	1,0	Teil

15 Der Klarlack wird mit einem Gemisch aus Xylol/Butanol/Butylglykolacetat ( 13:6: 1 ) auf Spritzfähigkeit verdünnt und auf ein vorbereitetes Substrat (coil coat beschichtetes Aluminiumblech, Automobilfiller, silbermetallic Basislack) gespritzt und bei 130°C 30 Minuten eingebrannt. Es resultiert eine Trockenschichtdicke von 40-50 µm Klarlack.

Die Proben werden einer beschleunigten Bewitterung unterworfen.

20 Resultate einer 1600stündigen Bewitterung der Proben in einem Xenon-Weatherometer (CAM 159, Atlas Corp.) sind in der Tabelle 1 zusammengefasst.

Tabelle 1:

25	Probe mit UV-Absorber der Formel	DOI (%) nach ASTM E 430
30	1,5 % (100)	67
	1,5 % (101)	41
35	0,75 % (100) und 0,75 % (101)	87
	1,5 % (100)	67
40	1,5 % (102)	47
	0,75 % (100) und 0,75 % (102)	75

45 Die mit den UV-Absorbermischungen stabilisierten Proben weisen eine höhere Beständigkeit gegen Bewitterung auf als Proben, die nur einen einzigen UV-Absorber in gleicher Menge enthalten.

Beispiel 2: Man wiederholt Beispiel 1 mit den Verbindungen der Formeln (100) und ( 101 ), und unterwirft entsprechende Proben auch einer zwölfmonatigen Freibewitterung in Florida. Tabelle 2 zeigt die erhaltenen Ergebnisse:

50

55

Tabelle 2

5	Probe mit UV-Absorber der Formel	DOI (%bezügl. Ausgangswert) 12 Monate Florida
10	1,5 % (100)	90
	1,5 % (101)	90
15	0,75 % (100) und 0,75 % (101)	95

Beispiel 3: Ein 2K-PUR-Klarlack wird aus den folgenden Komponenten hergestellt:

20	Macrinal <sup>®</sup> SM 510 (60 %)	75	Teile
	Butylglykolacetat	15	Teile
	Solvesso <sup>®</sup> 100	6,1	Teile
	Methylisobutylketon	3,6	Teile
25	Zinkoctoat (8 %ige toluolische Lösung)	0,1	Teil
	Byk <sup>®</sup> 300	0,2	Teile
30		100,0	Teile

35 Diesem Klarlack werden die zu prüfenden UV-Absorber in den angegebenen Mengen, gelöst in 10 ml Xylol zugegeben. Nach Hinzufügen von 30 Teilen Desmodur<sup>®</sup> N75 als Härter wird mit Xylol auf Spritzfähigkeit verdünnt, der fertige Lack auf ein vorbereitetes Substrat (coil coat beschichtetes Aluminiumblech, Automobilfüller, silbermetallic Basislack) appliziert und bei 90°C 30 Minuten eingebrannt. Es resultiert eine Trockenfilmdicke von ca. 40-50 µm.

Die Proben werden in einem Xenon-Weatherometer (Fa. Atlas; CAM 159; KFA-Methode) bewittert und der 20° Glanz (DIN 67530) gemessen.

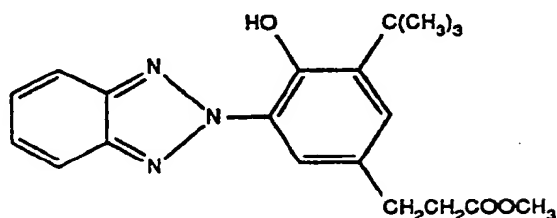
Tabelle 3

Probe mit UV-Absorber der Formel	20° Glanz nach 800 Stunden
1,6 % (100)	30
1,6 % (103)	48
1,6 % (104)	50
1,6 % (105)	38
1,6 % (103) und (105) im Gewichtsverhältnis 1:2	60
1,6 % (103) und (104) im Gewichtsverhältnis 1:2	76
1,6 % (100) und (105) im Gewichtsverhältnis 2:1	55

[% bezogen auf Festkörper des Klarlacks (incl. Härter)]

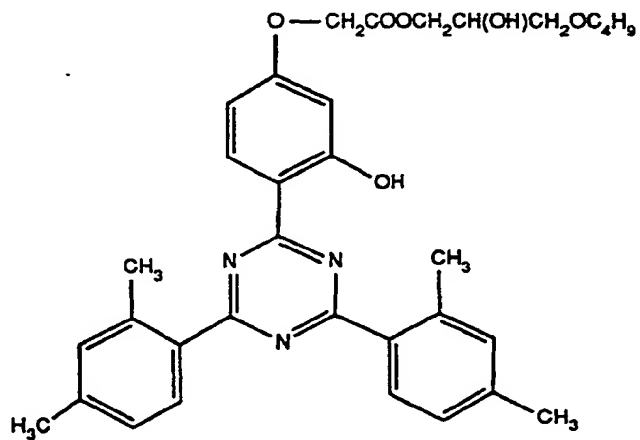
Die Verbindungen der Formeln (103), (104) und (105) besitzen die folgende Struktur.

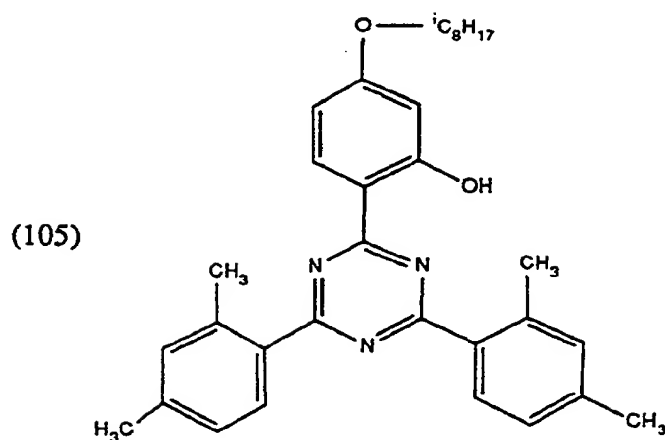
(103) Umsetzungsprodukt von



mit Polyäthylenglykol vom Molgewicht 300.

(104)





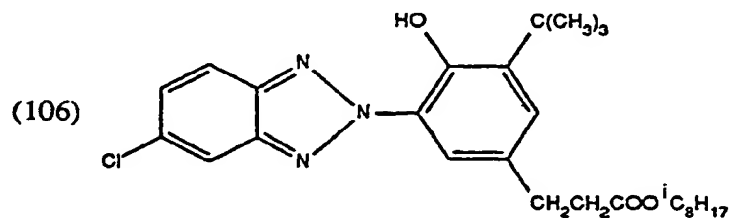
**Beispiel 4:** Proben gemäss Beispiel 3 mit Verbindungen der Formeln (103), (106) und (107) als UV-Absorber werden einer UVCON-Bewitterung (Atlas, UVB-313, 8 Stunden UV-Belichtung bei 70°C, 4 Stunden Kondensation bei 50°C) unterworfen. Anschliessend ermittelt man den 20° Glanz (DIN 67530) nach 1600 Stunden Bewitterung.

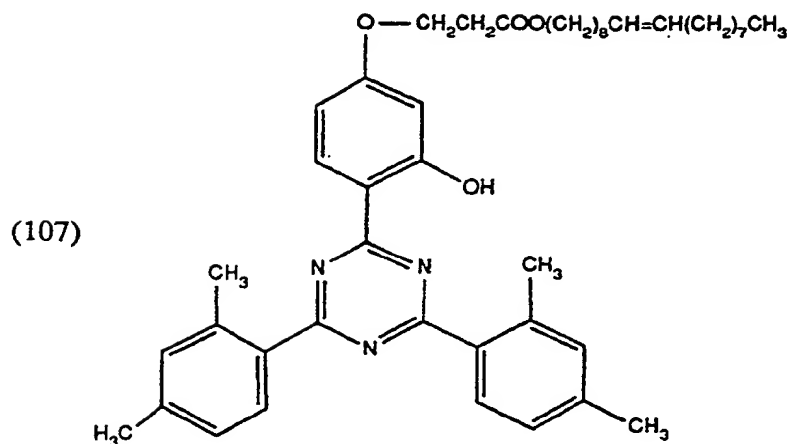
Tabelle 4

Probe mit UV-Absorber der Formel	20° Glanz nach 1600 Stunden
1,6 % (103)	4
1,6 % (106)	1
1,6 % (107)	8
1,6 % (103) und (107) im Gewichtsverhältnis 1:2	30
1,6 % (106) und (107) im Gewichtsverhältnis 2:1	39

[% bezogen auf Festkörper des Klarlacks (incl. Härter)]

Die Verbindungen der Formeln (106) und (107) besitzen die folgende Struktur:





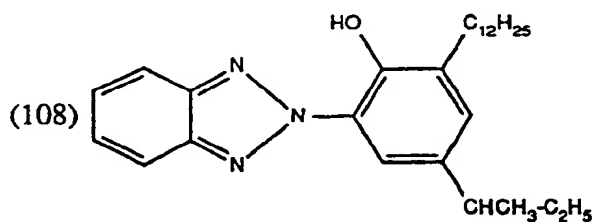
Beispiel 5: Man wiederholt Beispiel 4 mit den Verbindungen der Formeln (108) und (109) als UV-Absorber.

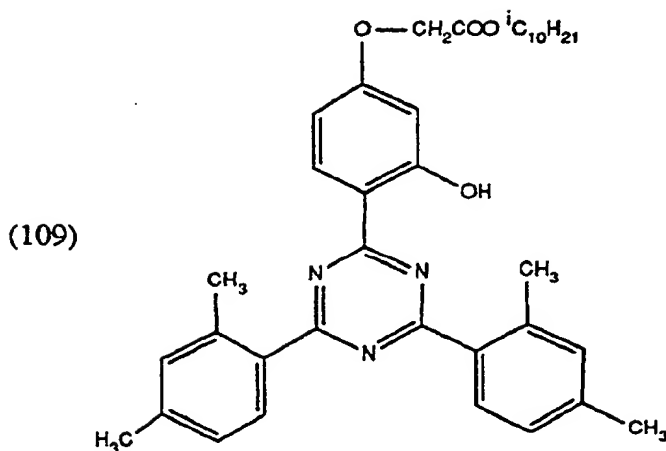
Tabelle 5

Probe mit UV-Absorber der Formel	20° Glanz nach 1600 Stunden
1,5 % (108)	Riss* nach 1200 Stunden
1,5 % (109)	4
0,75 % (108) und 0,75 % (109)	43

[% bezogen auf Festkörper des Klarlacks (incl. Härter)]  
\* [Rissbildung nach TNO-Skala]

Die Verbindungen der Formeln (108) und (109) besitzen die folgende Struktur:





**Beispiel 6:** Das Lacksystem gemäss Beispiel 2 wird mit den Verbindungen der Formeln (105), (106) und (109) als UV-Absorber auf Uniprime (Fa. PPG; ED 3150) beschichtete Aluminiumbleche appliziert und wie folgt bewittert: QUV (Q-Panel; UVA-340; 8 Stunden UV-Belichtung bei 70°C; 4 Stunden Kondensation bei 50°C). Danach wird die Veränderung des Yellowness-Index ( $\Delta\text{YI}$ , ASTM D 1925) und der Farbabstand  $\Delta\text{E}$  (DIN 6174; bewittert/unbewittert) ermittelt.

Tabelle 6

Probe mit UV-Absorber der Formel	$\Delta\text{YI}$ nach 500 Stunden	$\Delta\text{E}$
1,5 % (106)	4,0	0,8
1,5 % (105)	4,8	1,3
1,5 % (109)	7,1	1,9
0,75 % (106) und 0,75 % (105)	2,3	0,3
0,75 % (106) und 0,75 % (109)	1,7	0,2

[% bezogen auf Festkörper des Klarlacks (incl. Härter)]

**Beispiel 7:** Man stellt einen Klarlack folgender Zusammensetzung her:

Uracron <sup>®</sup> 2263 XB (50 %)	54,5	Teile
Cymel <sup>®</sup> 327 (90 %)	16,3	Teile
5 Butylglykolacetat	5,5	Teile
Xylol	19,4	Teile
n-Butanol	3,3	Teile
10 Baysilon <sup>®</sup> A (1 % in Xylol)	1	Teil
	<hr/>	
	100,0	Teile

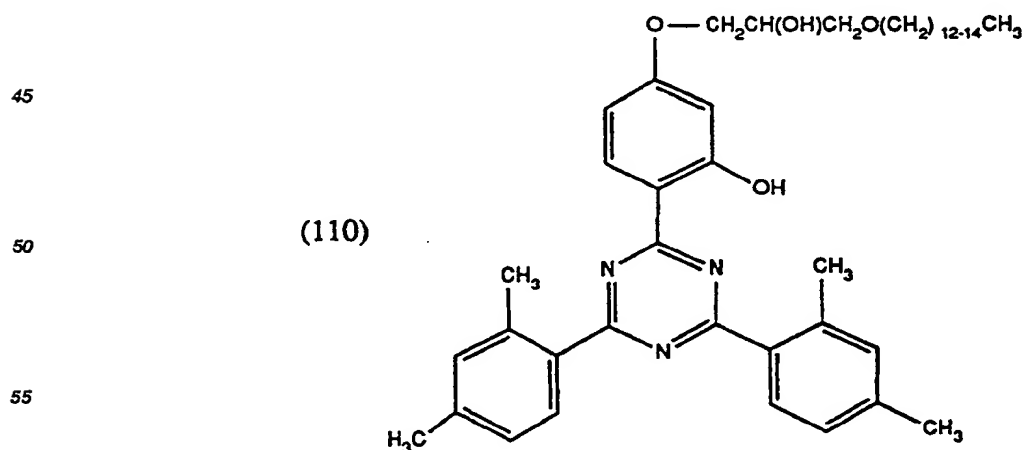
15 Die zu prüfenden UV-Absorber der Formeln ( 103) und ( 110) werden, gelöst in 10 g Xylol, in diesen Klarlack eingearbeitet. Mit einer Mischung aus Xylol, Butanol und Butylglykolacetat (Gewichtsverhältnis 13:6:1) wird der Klarlack auf Spritzfähigkeit verdünnt und auf ein Glasplättchen appliziert. Nach dem Einbrennen ( 130°C, 30 Minuten) resultiert eine Trockenfilmdicke von etwa 20 µm. Nach einer UVCON-Bewitterung (Atlas; UVB-313; 8 Stunden UV-Bestrahlung bei 70°C, 4 Stunden Kondensation bei 50°C) wird mittels UV-Spektroskopie der Verlust an UV-Absorber bestimmt.

Tabelle 7

Probe mit UV-Absorber der Formel	$\lambda_{\max}$	Verlust an UV-Absorber nach 1000 Stunden
2 % (103)	342	30 %
2 % (110)	338	21 %
35 1 % (103) und 1 % (110)	339	16 %

[ % bezogen auf Klarlackfestkörper ]

40 Die Verbindung der Formel (110) besitzt folgende Struktur:



**Beispiel 8:** Das Lacksystem gemäss Beispiel 7 mit den Verbindungen der Formeln (103) und (110) als UV-Absorber wird auf Uniprime (Fa. PPG; ED 3150) beschichtete Aluminiumbleche appliziert und einer UVCON-Bewitterung wie in Beispiel 7 beschrieben ausgesetzt. Danach wird an den Proben der Gitterschnitt gemäss DIN 53151 mit anschliessendem Bandabreissstest ausgeführt. Die Gitterschnittbewertung erfolgt ebenfalls nach DIN 53151.

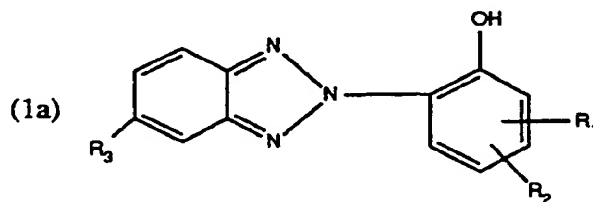
Tabelle 8

Probe mit UV-Absorber der Formel	Bewertung
2 % (103)	G $\pm$ 3 - 4
2 % (110)	G $\pm$ 1 - 2
1 % (103) und 1 % (110)	G $\pm$ 0

[% bezogen auf Klarlackfestkörper]

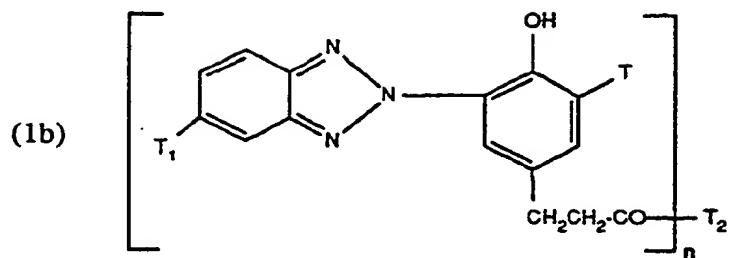
#### Patentansprüche

1. Lackzusammensetzung, dadurch gekennzeichnet, dass sie als UV-Absorber eine Mischung aus mindestens einem 2-Hydroxyphenylbenztriazol und mindestens einem 2-Hydroxyphenyltriazin enthält.
2. Lackzusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als UV-Absorber eine Mischung aus mindestens einem 2-Hydroxyphenylbenztriazol und mindestens einem 2-Hydroxyphenyltriazin, 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid enthält.
3. Lackzusammensetzung, dadurch gekennzeichnet, dass sie als UV-Absorber eine Mischung aus mindestens einem 2-Hydroxyphenyltriazin und mindestens einem 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid enthält.
4. Lackzusammensetzung nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass das 2-Hydroxyphenylbenztriazol der Formel

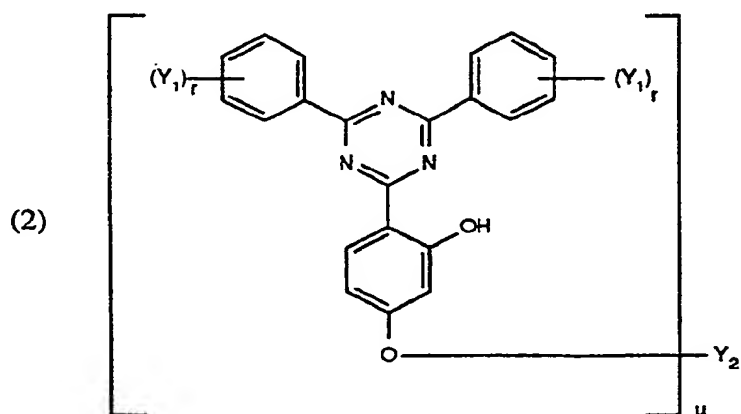


oder

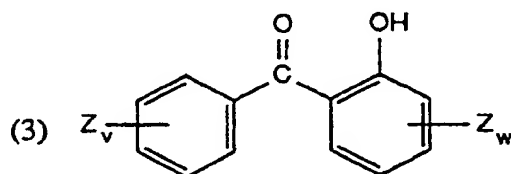




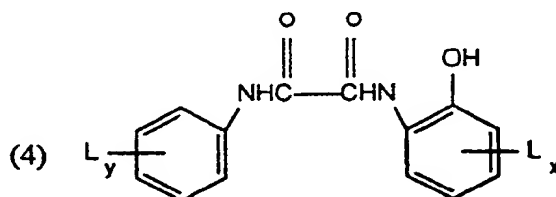
das 2-Hydroxyphenyltriazin der Formel



das 2-Hydroxybenzophenon der Formel



und das Oxalanilid der Formel

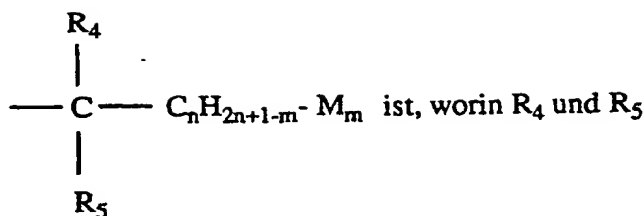


entspricht, worin

in den Verbindungen der Formel (1a)

R<sub>1</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, Cycloalkyl mit 5 bis 8 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel

50



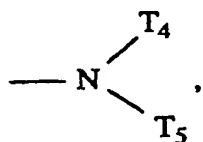
unabhängig voneinander Alkyl mit je 1 bis 5 Kohlenstoffatomen sind, oder  $R_4$  zusammen mit dem Rest  $C_n H_{2n+1-m}$  einen Cycloalkylrest mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen bildet,  $m$  1 oder 2,  $n$  eine ganze Zahl von 2 bis 20 und  $M$  ein Rest der Formel  $-COOR_6$  ist, worin  $R_6$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkoxyalkyl mit je 1 bis 20 Kohlenstoffatomen im Alkyl- und Alkoxyteil oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil ist,

$R_2$  Wasserstoff, Halogen, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, und

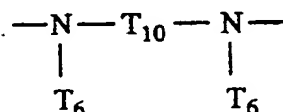
$R_3$  Wasserstoff, Chlor, Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder  $-COOR_6$ , worin  $R_6$  die angegebene Bedeutung hat, bedeutet, wobei mindestens einer der Reste  $R_1$  und  $R_2$  von Wasserstoff verschieden ist,

in den Verbindungen der Formel (1b)

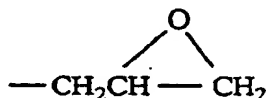
$T$  Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen,  $T_1$  Wasserstoff, Chlor oder Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 4 Kohlenstoffatomen,  $n$  1 oder 2 und  $T_2$ , wenn  $n$  1 ist, Chlor oder ein Rest der Formel  $-OT_3$  oder



und wenn  $n$  2 ist, ein Rest der Formel



oder  $-O-T_9-O-$  ist, worin  $T_3$  Wasserstoff, gegebenenfalls durch 1 bis 3 Hydroxylgruppen oder durch  $-OCOT_6$  substituiertes Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch  $-O-$  oder  $-NT_6-$  ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, das gegebenenfalls durch Hydroxyl oder  $-OCOT_6$  substituiert ist, gegebenenfalls durch Hydroxyl und/oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, gegebenenfalls durch Hydroxyl substituiertes Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder ein Rest der Formel  $-CH_2CH(OH)-T_7$  oder



ist,  $T_4$  und  $T_6$  unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch  $-O-$  oder  $-NT_6-$  ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, Phenyl, mit Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder Hydroxyalkyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen bedeuten,  $T_6$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Phenyl, mit Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil,  $T_7$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, gegebenenfalls durch Hydroxyl substituiertes Phenyl, Phenylalkyl mit 1 bis 4

Kohlenstoffatomen im Alkylteil oder  $-\text{CH}_2\text{OT}_8$ ,  $\text{T}_8$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, Cycloalkyl mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenyl, mit Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil,  $\text{T}_9$  Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkinylen mit 4 Kohlenstoffatomen, Cyclohexylen, durch  $-\text{O}-$  ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen oder einen Rest der Formel  $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OT}_{11}\text{OCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2-$  oder  $-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_2\text{OH})_2-\text{CH}_2-$ ,  $\text{T}_{10}$  gegebenenfalls durch  $-\text{O}-$  ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen oder Cyclohexylen,  $\text{T}_{11}$  Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, durch  $-\text{O}-$  ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, 1,3- oder 1,4-Cyclohexylen, 1,3- oder 1,4-Phenylene ist, oder  $\text{T}_{10}$  und  $\text{T}_8$  zusammen mit den beiden Stickstoffatomen einen Piperazinring darstellen,

in den Verbindungen der Formel (2)

u 1 oder 2 ist, und r eine ganze Zahl von 1 bis 3 bedeutet, die Substituenten  $\text{Y}_1$  unabhängig voneinander Wasserstoff, Hydroxyl, Halogenmethyl, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Halogen bedeuten,  $\text{Y}_2$ , wenn u 1 ist, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Halogen, unsubstituiertes oder durch Alkyl oder Alkoxy mit je 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Halogen substituiertes Phenoxy, durch  $-\text{COOH}$ ,  $-\text{COOY}_8$ ,  $-\text{CONH}_2$ ,  $-\text{CONHY}_9$ ,  $-\text{CONY}_9\text{Y}_{10}$ ,  $-\text{NH}_2$ ,  $-\text{NHY}_9$ ,  $-\text{NY}_9\text{Y}_{10}$ ,  $-\text{NHCOY}_{11}$ ,  $-\text{CN}$  und/oder  $-\text{OCOY}_{11}$  substituiertes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, durch ein oder mehrere Sauerstoffatome unterbrochenes und gegebenenfalls durch Hydroxyl oder Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen substituiertes Alkyl mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 6 Kohlenstoffatomen, Glycidyl, gegebenenfalls durch Hydroxyl, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder  $-\text{OCOY}_{11}$  substituiertes Cyclohexyl, unsubstituiertes oder durch Hydroxyl, Chlor und/oder Methyl substituiertes Phenylalkyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkylteil,  $-\text{COY}_{12}$  oder  $-\text{SO}_2\text{Y}_{13}$  bedeutet, oder  $\text{Y}_2$  wenn u 2 ist, Alkylen mit 2 bis 16 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, Xylylen, durch ein oder mehrere  $-\text{O}-$  unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkylen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen,  $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2-\text{O}-\text{Y}_{15}-\text{OCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2-$ ,  $-\text{CO}-\text{Y}_{16}-\text{CO}-$ ,  $-\text{CO}-\text{NH}-\text{Y}_{17}-\text{NH}-\text{CO}-$  oder  $-(\text{CH}_2)_m-\text{CO}_2-\text{Y}_{18}-\text{OCO}-(\text{CH}_2)_m-$  ist, worin m 1, 2 oder 3 ist,  $\text{Y}_8$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch ein oder mehrere Sauerstoff- oder Schwefelatome oder  $-\text{NT}_6-$  unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen, durch  $-\text{P}(\text{O})(\text{OY}_{14})_2$ ,  $-\text{NY}_9\text{Y}_{10}$  oder  $-\text{OCOY}_{11}$  und/oder Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen, Glycidyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkylteil bedeutet,  $\text{Y}_9$  und  $\text{Y}_{10}$  unabhängig voneinander Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkoxyalkyl mit 3 bis 12 Kohlenstoffatomen, Dialkylaminoalkyl mit 4 bis 16 Kohlenstoffatomen oder Cyclohexyl mit 5 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeuten, oder  $\text{Y}_9$  und  $\text{Y}_{10}$  zusammen Alkylen, Oxaalkylen- oder Azaalkylen mit je 3 bis 9 Kohlenstoffatomen bedeuten,  $\text{Y}_{11}$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Phenyl,  $\text{Y}_{12}$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Phenoxy, Alkylamino mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Phenylamino,  $\text{Y}_{13}$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenyl, Alkylphenyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im Alkylrest,  $\text{Y}_{14}$  Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Phenyl,  $\text{Y}_{15}$  Alkyl mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenylene oder eine Gruppe  $-\text{Phenylene-M-Phenylene}-$ , worin M  $-\text{O}-$ ,  $-\text{S}-$ ,  $-\text{SO}_2-$ ,  $-\text{CH}_2-$  oder  $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$  ist,  $\text{Y}_{16}$  Alkylen, Oxaalkylen oder Thiaalkylen mit je 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenylene oder Alkenylen mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen,  $\text{Y}_{17}$  Alkylen mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen, Phenylene, Alkylphenylene mit 1 bis 11 Kohlenstoffatomen im Alkylteil und  $\text{Y}_{18}$  Alkylen mit 2 bis 10 Kohlenstoffatomen oder durch Sauerstoff ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen ist,

in den Verbindungen der Formel (3)

v eine ganze Zahl von 1 bis 3 und w 1 oder 2 ist, und die Substituenten Z unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, Hydroxyl oder Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen sind, und in den Verbindungen der Formel (4)

x eine ganze Zahl von 1 bis 3 ist, und die Substituenten L unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Alkylthio mit je 1 bis 22 Kohlenstoffatomen, Phenoxy oder Phenylthio bedeuten.

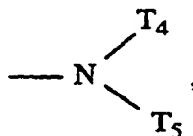
5. Lackzusammensetzung nach Anspruch 1, 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass in der Mischung das 2-Hydroxyphenylbenzotriazol zu 2-Hydroxyphenyltriazin bzw. das 2-Hydroxyphenylbenzotriazol zu 2-Hydroxyphenyltriazin, 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid bzw. das 2-Hydroxyphenyltriazin zu 2-Hydroxybenzophenon und/oder Oxalanilid im Molverhältnis von 3:1 bis 1:3, insbesondere 2:1 bis 1:2 vorliegt.
6. Lackzusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass sich der Substituent  $\text{R}_1$  oder  $\text{R}_2$  in den Verbindungen der Formel (1a) in ortho- oder para-Stellung zur Hydroxylgruppe befindet.

7. Lackzusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass in den Verbindungen der Formel (1a) R<sub>1</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, R<sub>2</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, und R<sub>3</sub> Wasserstoff, Chlor oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist.

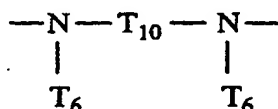
8. Lackzusammensetzung nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass R<sub>1</sub> in ortho-Stellung zur Hydroxylgruppe steht und Wasserstoff, Alkyl mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen ist, R<sub>2</sub> in para-Stellung zur Hydroxylgruppe steht und Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder Cumyl und R<sub>3</sub> Wasserstoff oder Chlor ist.

9. Lackzusammensetzung nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass R<sub>1</sub> Alkyl mit 8 bis 12 Kohlenstoffatomen, R<sub>2</sub> Alkyl mit 4 bis 6 Kohlenstoffatomen und R<sub>3</sub> Wasserstoff ist.

10. Lackzusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass in den Verbindungen der Formel (1b) T Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, T<sub>1</sub> Wasserstoff, Chlor oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, n 1 oder 2 und T<sub>2</sub>, wenn n 1 ist, einer der Reste der Formel -OT<sub>3</sub> oder

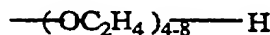


und wenn n 2 ist, ein Rest der Formel -O-T<sub>9</sub>-O- oder

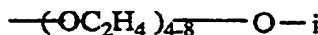


ist, worin T<sub>3</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, oder durch -O- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen ist, T<sub>4</sub> und T<sub>5</sub> unabhängig voneinander Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen oder Hydroxyalkyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen sind, T<sub>6</sub> Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen ist, und T<sub>9</sub> und T<sub>10</sub> Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 8 Kohlenstoffatomen oder durch -O- ein- oder mehrfach unterbrochenes Alkylen mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen sind.

11. Lackzusammensetzung nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, dass T Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, T<sub>1</sub> Wasserstoff oder Chlor und T<sub>2</sub> einer der Reste der Formel -OT<sub>3</sub> oder -O-T<sub>9</sub>-O- ist, worin T<sub>3</sub> Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel

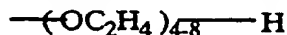


und T<sub>9</sub> Alkylen mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel



ist.

12. Lackzusammensetzung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass T<sub>2</sub> ein Rest der Formel -OT<sub>3</sub> und T<sub>3</sub> Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder ein Rest der Formel



ist.

13. Lackzusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass in den Verbindungen der Formel

(2) die Substituenten  $Y_1$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder Halogen bedeuten,  $Y_2$ , wenn u 1 ist, Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub>, -CONY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub>, und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Glycidyl oder Phenylalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil ist, oder  $Y_2$ , wenn u 2 ist, Alkylen mit 2 bis 16 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, Xylylen oder durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkylen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen, ist wobei die Substituenten  $Y_8$  bis  $Y_{11}$  die in Anspruch 3 angegebenen Bedeutungen haben.

14. Lackzusammensetzung nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass die Substituenten  $Y_1$  Wasserstoff, Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Chlor sind,  $Y_2$ , wenn u 1 ist, unsubstituiertes oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub>, -CONY<sub>9</sub>Y<sub>10</sub>, und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Glycidyl oder Benzyl ist, oder  $Y_2$ , wenn u 2 ist, Alkylen mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen, Butenylen, Xylylen oder durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkylen mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen ist, wobei  $Y_8$  Alkyl mit 4 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenylen mit 12 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch ein oder mehrere -O- unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, ist  $Y_9$  und  $Y_{10}$  unabhängig voneinander Alkyl mit 4 bis 8 Kohlenstoffatomen sind, und  $Y_{11}$  Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder Alkenyl mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen ist.

15. Lackzusammensetzung nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass u 1 und r 2 ist,  $Y_1$  Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und  $Y_2$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub> und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen ist, worin  $Y_8$  Alkyl mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 3 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch ein oder mehrere Sauerstoffatome unterbrochenes und/oder durch Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen und  $Y_{11}$  Alkenyl 2 bis 18 Kohlenstoffatomen ist.

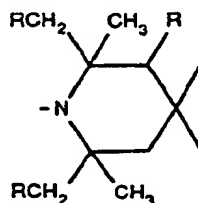
16. Lackzusammensetzung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass  $Y_2$  Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 12 bis 15 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub> und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist, worin  $Y_8$  Alkyl mit 8 bis 12 Kohlenstoffatomen, Alkenyl mit 12 bis 18 Kohlenstoffatomen oder durch ein Sauerstoffatom unterbrochenes und Hydroxyl substituiertes Alkyl mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen und  $Y_{11}$  Alkenyl 2 bis 8 Kohlenstoffatomen ist.

17. Lackzusammensetzung nach Anspruch 15 und 16, dadurch gekennzeichnet, dass  $Y_1$  Methyl und  $Y_2$  ein Octylrest oder durch Hydroxyl, Alkoxy mit 13 oder 15 Kohlenstoffatomen, -COOY<sub>8</sub> und/oder -OCOY<sub>11</sub> substituiertes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist, worin  $Y_8$  ein Decyl- oder Octadecenylrest oder durch Hydroxyl substituiertes und ein Sauerstoffatom unterbrochenes Alkyl mit 7 Kohlenstoffatomen und  $Y_{11}$  Propenyl ist.

18. Lackzusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass in den Verbindungen der Formel (3) v und w unabhängig voneinander 1 oder 2 sind, und die Substituenten Z unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen oder Alkoxy mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen sind.

19. Lackzusammensetzung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass in den Verbindungen der Formel (4) x und y 1 oder 2 ist, und die Substituenten L unabhängig voneinander Wasserstoff oder Alkyl mit je 1 bis 12 Kohlenstoffatomen sind.

20. Lackzusammensetzung nach Anspruch 1 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass sie zusätzlich mindestens ein gehindertes Amin enthält, insbesondere ein solches, das mindestens einen Rest der Formel



enthält, worin R Wasserstoff oder Methyl ist.

21. Verwendung einer Mischung aus den Verbindungen der Formeln (1a) und/oder (1b) und den Verbindungen der Formeln (2), (3) und/oder (4) in Lacken.

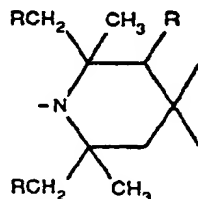
22. Verwendung einer Mischung aus den Verbindungen der Formeln (1a) und/oder (1b) und den Verbindungen der Formel (2) in Lacken.

23. Verwendung einer Mischung aus den Verbindungen der Formel (2) und den Verbindungen der Formeln (3) und/oder (4) in Lacken.

24. Verwendung nach Anspruch 21, 22 oder 23, worin die Lacke Ein- oder Zweischichtenlacke sind.

25. Verwendung nach Anspruch 21, 22 oder 23, worin die Lacke strahlenhärtbare Lacke sind.

26. Verwendung nach Anspruch 21, 22 oder 23, dadurch gekennzeichnet, dass die Mischung in Kombination mit mindestens einem sterisch gehinderten Amin, insbesondere einem solchen Amin eingesetzt wird, das mindestens einen Rest der Formel



enthält, worin R Wasserstoff oder Methyl ist.

27. Lackfilm, erhältlich durch Aufbringen einer Lackzusammensetzung gemäss Anspruch 1 oder 3 auf eine Oberfläche und Härtung der aufgetragenen Lackzusammensetzung.



Europäisches  
Patentamt

# EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 91 81 0192

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. CL5)
Y	FR-A-2 619 814 (SANDOZ) * Ansprüche 1-8 *	1-3	C 09 D 7/12
Y	US-A-3 268 474 (W.B. HARDY) * Anspruch 1; Spalte 2, Formula II *	1-3	
Y	DE-A-3 320 615 (SANDOZ) * Ansprüche 1-3,5 *	1-3	
Y	FR-A-2 607 494 (SANDOZ) * Anspruch 1 *	1-3	
A	EP-A-0 180 548 (CIBA-GEIGY) * Anspruch 1 *	10-12	
A,D	EP-A-0 200 190 (AMERICAN CYANAMID CO.) * Anspruch 1 *	20	
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. CL5)
			C 09 D
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 05-08-1991	Prüfer BUSCAGLIONE Y.
<p><b>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</b></p> <p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet  Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie  A : technologischer Hintergrund  O : mündliche Offenbarung  P : Zwischenliteratur</p> <p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze  E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist  D : in der Anmeldung angeführtes Dokument  L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument</p> <p>* : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			

EPO FORM 150 (3.82 (P0403))

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**